



**KERNFORSCHUNGSANLAGE JÜLICH GmbH**

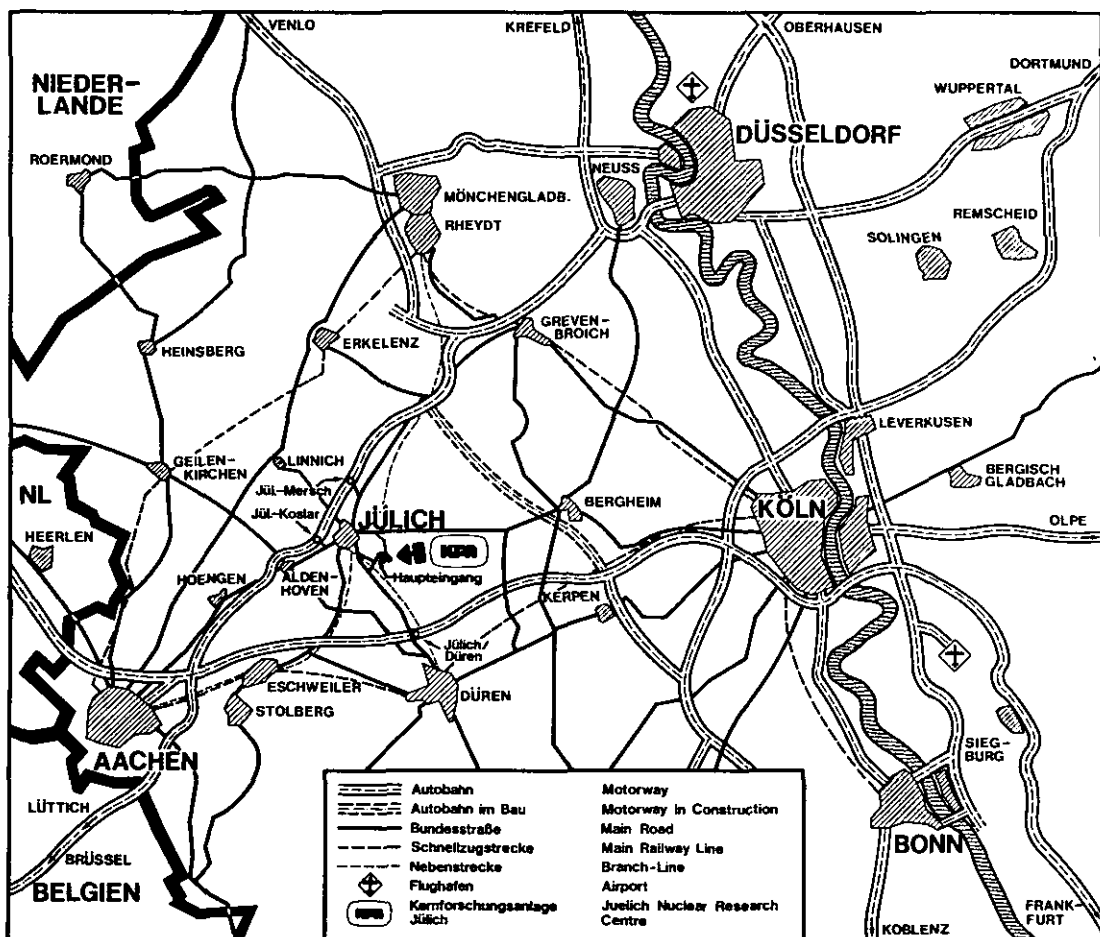
Institut für Chemische Technologie

**Chemie und Verfahrenstechnik des  
HEAD-ENDs bei der Wiederaufarbeitung  
von HTR-Brennelementen**

von

H. Tischer

**Jül - Spez - 130**  
**Oktober 1981**  
**ISSN 0343 - 7639**



Als Manuskript gedruckt

### Spezielle Berichte der Kernforschungsanlage Jülich - Nr. 130

Institut für Chemische Technologie Jül - Spez - 130

Zu beziehen durch: ZENTRALBIBLIOTHEK der Kernforschungsanlage Jülich GmbH  
Postfach 1913 · D-5170 Jülich (Bundesrepublik Deutschland)

Telefon: 0 24 61/61-0 · Telex: 833 556 kfa d

# **Chemie und Verfahrenstechnik des HEAD-ENDs bei der Wiederaufarbeitung von HTR-Brennelementen**

von

H. Tischer

unter Mitarbeit von

H.-G. Aschhoff, K. Hartmann, N. Hoogen,  
H. Kronschnabel, E. Merz.

März 1981

## ABSTRACT

The first step in the reprocessing of HTGR fuel elements is the separation of the fuel element-graphite from the heavy metals. Several physical and chemical separation methods are presented in this report and investigated as to their suitability.

If the processing aspects especially under their nuclear conditions are compared the fluidized-bed-burning is the best technical separation procedure.

Since complete emission of the isotope C-14 with the offgas from an industrial plant will probably not be tolerated methods of its retention are discussed.

Various fuel systems and their effects on the processing technique are presented and HEAD-END facilities, already in operation or still in the planning stage, are described.



## KURZFASSUNG

In der Eingangsstufe der Wiederaufarbeitung von HTR-Brennelementen (BE) wird der BE-Graphit vom Schwermetall getrennt. Dazu sind verschiedene physikalische und chemische Trennmethoden, die hier vorgestellt werden, auf ihre Eignung hin untersucht worden.

Beim verfahrenstechnischen Vergleich im besonderen Hinblick auf die kerntechnischen Randbedingungen erweist sich die Wirbelschichtverbrennung als das technisch beste Trennverfahren.

Da möglicherweise die vollständige Emission des im Brennelement enthaltenen radioaktiven Isotops C-14 bei einer Großanlage Restriktionen unterworfen ist, werden Verfahren zu seiner Rückhaltung diskutiert.

Neben der Darstellung verschiedener Brennstoffkonzepte und deren Konsequenzen auf die Verfahrenstechnik werden abschließend Kalte HEAD-END Versuchsanlagen, die teils projektiert, teils ausgeführt sind, beschrieben.

## VORWORT

Bei dem vorliegenden Bericht handelt es sich um eine Fortsetzung der bewertenden Literaturstudie zum Stande von Wissenschaft und Technik zur Wiederaufarbeitung im Thoriumkreislauf.\*

Entgegen der ursprünglichen Absicht, einen Gesamtbericht in zwei Teilen herauszugeben, befaßt sich jetzt der Teil II ausschließlich mit den Head-End-Verfahren für graphithaltige Brennelemente für Hochtemperaturreaktoren.

Die Besonderheit und Neuartigkeit der Verfahrenstechnik, die für diese Brennelementtypen vorherrscht, die sich im übrigen nicht allein auf den Thoriumkreislauf beschränkt, sondern gleichermaßen auch für Brennelemente eines niedrig angereicherten Uran-Plutoniumkreislaufes (sog. LEU-Konzept) gilt, rechtfertigt die Herausgabe eines eigenen Teilberichtes. Die noch verbleibenden Themen der Auflösung thoriumhaltiger Brennstoffe sowie die gesamte Detailbeschreibung der Prozeßchemie werden dann in einem Teil III erscheinen.

\* E. Merz: Wiederaufarbeitung im Thoriumkreislauf. - Eine bewertende Literaturstudie zum Stande der Technik. - Teil I JÜL-Spez-85, August 1980; ISSN 0343-7639, 126 S.

## INHALTSVERZEICHNIS

	Seite
1. DIE EINGANGSSTUFE, DAS HEAD-END, BEI DER WIEDERAUFARBEITUNG VON HTR-BRENNELEMENTEN	1
1.1 Anforderungen an das HEAD-END für die Aufarbeitung von HTR-Brennelementen	1
1.2 Charakterisierung der HTR-Brennelemente unter dem Aspekt einer HEAD-END-Behandlung	3
1.3 Abgrenzung und Ziel dieses Berichtes	5
2. VERFAHREN ZUR GRAPHIT-SCHWERMETALLTRENNUNG	7
2.1 Physikalische Trennmethoden	7
2.1.1 Trennverfahren	9
2.1.2 Desintegrationsverfahren für physikalische Trennprozesse	12
2.1.2.1 Desintegration mit Alkalimetallen	14
2.1.2.2 Desintegration mit Brom	16
2.1.2.3 Desintegration mit Eisen III-Chlorid	17
2.1.2.4 Elektrolytische Desintegration	17
2.1.2.5 Oxydative chemische Desintegration	22
2.1.2.6 Mechanische Desintegration	23
2.1.3 Zusammenfassung	32
2.2 Chemische Trennmethoden	32
2.2.1 Chemische Abtrennung durch Umsetzen des Schwermetalles	33
2.2.1.1 Feinmahlen der Brennelemente	34
2.2.1.2 Umsetzen des Schwermetalles	39
2.2.1.2.1 Fluorierung	39
2.2.1.2.2 Chlorierung [CHLORINEX]	39
2.2.1.2.3 Direkte Auflösung in Salpetersäure [GRIND-LEACH]	43
2.2.2 Chemische Abtrennung durch Umsetzen des Graphits	44
2.2.2.1 Mechanisch kontrollierte Zerkleinerung der Brennelemente	45
2.2.2.1.1 Zerkleinerung von Kugel-Brennelementen	46
2.2.2.1.2 Zerkleinerung von Block-Brennelementen	50
2.2.2.2 Umsetzung des Graphits	54

	Seite
2.2.2.2.1 Umsetzung zu CO <sub>2</sub> (Verbrennen)	54
2.2.2.2.2 Umsetzung zu Kohlenwasser- stoffen und anderen Gasge- mischen	58
2.2.2.3 Zusammenfassung	59
3. WEITERBEHANDLUNG DES ABGETRENNTEN GRAPHITS	59
4. DAS C-14-PROBLEM UND SEINE AUSWIRKUNGEN AUF DAS HEAD-END	65
4.1 Bildung und Eigenschaften des Kohlenstoff- isotopes C-14	65
4.2 Verfahren zur Rückhaltung des C-14 Inven- tars aus einem HEAD-END	69
4.2.1 CO <sub>2</sub> -Fixierung in Calciumcarbonat	69
4.2.2 Technische Kurzbeschreibung der CO <sub>2</sub> -Fixierung	69
4.2.3 Retention des kontaminierten HEAD-END-Abgases durch Spaltung in seine Komponenten	70
4.2.3.1 Vergasung des Graphits als HEAD- END-Trennschritt	70
4.2.3.2 Wasserdampfvergasung mit an- schließender Kohlenmonoxid- spaltung	72
4.2.3.2.1 Grundlagen	72
4.2.3.2.2 Verfahrenskombination	73
4.2.3.3 Kerntechnische Randbedingungen	75
4.2.3.4 Wasserstoffvergasung des Graphits	76
4.2.3.4.1 Verfahrenskonzept "Kohlenwasser- stoffpfad"	76
4.2.3.4.2 Einsatz eines Katalysators	77
4.2.4 Wiederverwendung des Graphits	78
4.3 Zusammenfassung	79
5. BESCHREIBUNG DES VERBRENNUNGS-HEAD-ENDs	80
5.1 Verbrennungsverfahren	80
5.1.1 Festbettverbrennung (Verbrennung ganzer Brennelemente)	80
5.1.2 Wirbelschichtverbrennung (Ver- brennung zerkleinerter Brenn- elemente)	82

	Seite
5.1.2.1 Wirbelschichtverbrennung für das Einpartikel-Brennstoffsystem mit (Th,U)O <sub>2</sub> -Kernen	83
5.1.2.2 Wirbelschichtverbrennung für das Einpartikel-Brennstoffsystem mit UO <sub>2</sub> - bzw. UC <sub>2</sub> -Kernen	86
5.1.2.3 Wirbelschichtverbrennung für das Zweipartikel-Brennstoffsystem (FEED-BREED-System)	87
5.2 Schematische Fließbilder für das Verbrennungs-HEAD-END	88
5.2.1 Referenzverfahren für das Einpartikel-Brennstoff-System mit (Th,U)O <sub>2</sub> -Kernen	89
5.2.2 Referenzverfahren für das FEED-BREED-System	90
5.3 Anlagen und Apparate	91
5.3.1 Brennelementzerkleinerung	92
5.3.2 Hauptverbrennung	92
5.3.2.1 Berechnungsunterlagen	92
5.3.2.2 Baugruppen eines Hauptwirbelschichtreaktors	94
5.3.3 FEED-BREED-Trennung und SiC-Brechstufe	98
5.3.4 Nachverbrennung	99
5.3.5 Abgasbehandlung	100
5.4 Einzeluntersuchungen, Einzelprobleme	101
5.4.1 Kritikalitätsrechnung	101
5.4.2 Leistungssteigerung	102
5.4.3 Aufbrechen der SiC-Beschichtung	103
5.4.3.1 Beschreibung des SiC-beschichteten Brennstoffteilchens	103
5.4.3.2 Prinzipielle Möglichkeiten zur Zerstörung der SiC-Beschichtung	105
5.4.3.3 Beschreibung der einzelnen Verfahren und Anlagen	106
5.4.3.4 Vor- und Nachteile der beschriebenen Verfahren, Versuch einer Bewertung	113
5.4.4 FEED-BREED-Trennung	116
5.4.4.1 Begründung für die Notwendigkeit der FEED-BREED-Trennung	116
5.4.4.2 Problematik der FEED-BREED-Trennung	117
5.4.4.3 Möglichkeiten der FEED-BREED-Trennung	118

	Seite
5.4.4.4 Die Trennung der unterschiedlichen FEED-BREED-Partikelgemische durch Kombination verschiedener Verfahren	130
5.4.5 Sonstige Einzeluntersuchungen	145
5.5 Projekte, Vorhaben	145
5.5.1 Projekt JUPITER	147
5.5.2 Vorhaben VENUS	149
5.5.3 Vorhaben ARTHUR	152
5.5.4 Projekte JPHF und JFPD	152
5.5.5 Vorhaben AVR-VI	161
7. LITERATURVERZEICHNIS	169
8. ABKÜRZUNGEN	194

## 1. DIE EINGANGSSTUFE, DAS HEAD-END, BEI DER WIEDERAUFARBEITUNG VON HTR-BRENNELEMENTEN

Zum Eingangsteil einer Wiederaufarbeitungsanlage (WAA) gehören:

1. Annahmestation für die Brennelemente (BE),
2. Brennelementlager,
3. Einrichtung für die Brennelement-Behälter-entleerung,
4. Anlage zur Abtrennung des Hüll- und Strukturmaterials vom Schwermetall einschließlich Abgasbehandlung und
5. Zwischenlager und Übergabestation zur naß-chemischen Abtrennung der Reststoffe vom Spalt- und Brutstoff.

Der Begriff HEAD-END wird normalerweise mit dem Eingangsteil des Gesamtprozesses gleichgesetzt.

Hier sollen unter dem Begriff "HEAD-END" Verfahren mit den zugehörigen Apparaturen verstanden und vorgestellt werden, mit denen HTR-Brennelemente so behandelt werden, daß eine anschließende Trennung der Spalt- und Brutstoffe von den Reststoffen, hauptsächlich Spaltprodukte, nach einem bekannten Verfahren wie z.B. THOREX oder PUREX möglich ist.

### 1.1 Anforderungen an das HEAD-END für HTR-Brennelemente

Eine Aufarbeitung von HTR-Brennelementen (Kap. 1.2) erfordert eine HEAD-END-Behandlung in der

1. sämtlicher Graphit abgetrennt wird (max. C-Rest nach HEAD-END-Behandlung  $< 1,3 \%$ ),
2. sämtliches SiC der Hüllschichten abgetrennt wird,

3. bei einem sog. FEED-BREED-Brennelementkonzept (siehe Kap. 1.2) die Spalt- und Brutpartikeln voneinander getrennt werden und
4. das Schwermetall so in Lösung gebracht wird, daß
  - a) die thoriumhaltigen Brennelemente nach dem THOREX-Prozeß und
  - b) die sogenannten LEU-Brennelemente nach dem PUREX-Prozeßaufgearbeitet werden können.

Gegenstand dieses Berichts sind Verfahren für die ersten drei Aufgaben.

Es werden, bis auf eine Ausnahme, also nur jene HEAD-END-Verfahren und Verfahrenskombinationen vorgestellt, mit denen die Brennelemente so behandelt werden, daß das Schwermetall (SM = Spalt- + Brutstoff = Brennstoff) dem Angriff der Lössäure zugänglich gemacht wird. Von diesen Prozessen wird verlangt, daß sie weder den Auflöseprozeß noch die anschließende Extraktion nachteilig beeinflussen.

Geht man davon aus, daß

1. eine Anlage zur HEAD-END-Behandlung eine Verfügbarkeit von 200 d/a haben soll,
2. eine Anlage im 24 h-Betrieb gefahren werden soll und
3. die kleinste kommerzielle HEAD-END-Baueinheit ca. 5000 MWe entsorgen soll (sie ist gleichzeitig das Grundmodul einer Großanlage, z.B. 50.000 MWe-Anlage = 10 x 5000 MWe),

dann lassen sich einfach merkbare Regeln zur Abschätzung der Größenordnung für Trennleistung bzw. Graphit-Abfallmengengenerierung formulieren.



Für die jährlich anfallenden C-Mengen: Pro 10 MWe installierter HTR-Leistung fällt jährlich 1 t Graphit (C) an.

Für die Abtrennleistung: In einem HEAD-END-Grundmodul (Entsorgung für 5000 MWe) müssen stündlich 1 Block-Brennelement oder 550 kugelförmige Brennelemente - entsprechend 110 kg C - durchgesetzt werden.

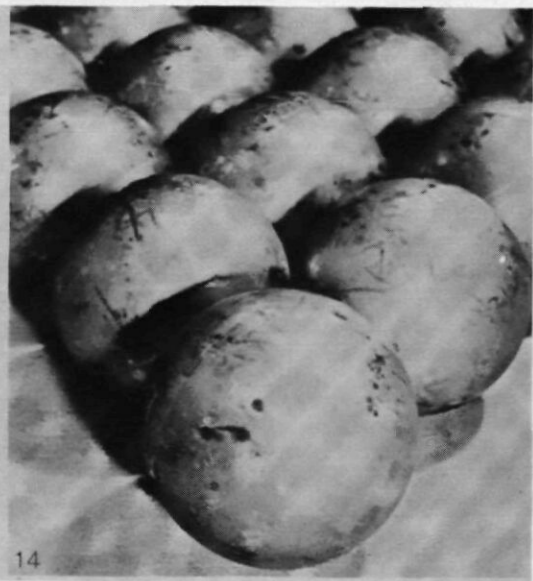
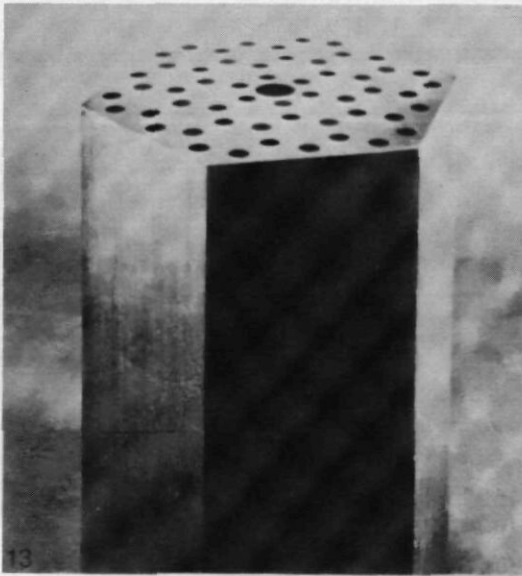
## 1.2 Charakterisierung der HTR-Brennelemente unter dem Aspekt einer HEAD-END-Behandlung

Trivialerweise ist die Wahl eines geeigneten HEAD-END-Verfahrens vom Brennelementtyp abhängig. Zum besseren Verständnis werden hier noch einmal die verschiedenen HTR-Brennelemente mit ihren Schwermetall-Beladungsvarianten vorgestellt. Es werden allerdings nur jene Merkmale beschrieben, die einen wesentlichen Einfluß auf den HEAD-END-Prozeß haben.

In der Bundesrepublik Deutschland und in den USA wurden zwei grundsätzlich unterschiedliche Brennelementtypen für den HTR entwickelt. In den USA das Blockbrennelement und in Deutschland das Kugelbrennelement (siehe Abb. 1). In beiden Brennelementtypen ist der Brennstoff in Form von beschichteten Teilchen (Coated Particles, CP) eingebracht. Im Block-BE sind die CP heterogen in sogenannte "sticks" und in den Kugel-BE dagegen homogen eingebettet (siehe auch Abb. 31).

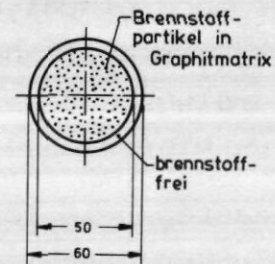
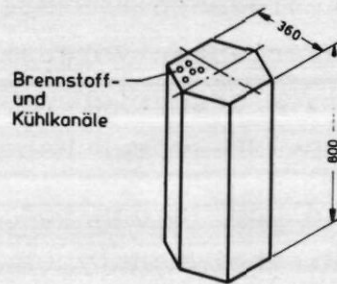
Der Kern eines CP kann eine Mischung von Uran- und Thoriumoxid sein oder nur aus Uran- und aus Thoriumoxid bzw. -carbid bestehen. Befindet sich in den BE nur eine Sorte von CP, die entweder nur aus  $(U,Th)O_2$  oder  $UO_2$  bestehen, dann spricht man von einem Einzelpartikelbrennstoffsystem. Das Brennstoffsystem, bei dem die Brennelemente mit niedrig angereichertem  $UO_2$  ( $< 20\%$   $^{235}U$ ) beladen sind, wird als LEU-System bezeichnet.

Besteht dagegen die Brennelementbeladung aus zwei unterschiedlichen Partikelsorten (Kerne der CP aus  $UO_2$  bzw.  $UC_2$  und aus  $ThO_2$  bzw.  $ThC_2$ ), dann liegt ein Zweipartikelbrenn-



GAC-Blockbrennelement

THTR-Kugelbrennelement



$m_{BE}$	=	130 kg
$m_C$	=	103 kg
$m_{PyC}$	=	13 kg
$m_{SM}$	=	14 kg

$m_{BE}$	=	205 g
$m_C$	=	185 g
$m_{PyC}$	=	9 g
$m_{SM}$	=	11 g

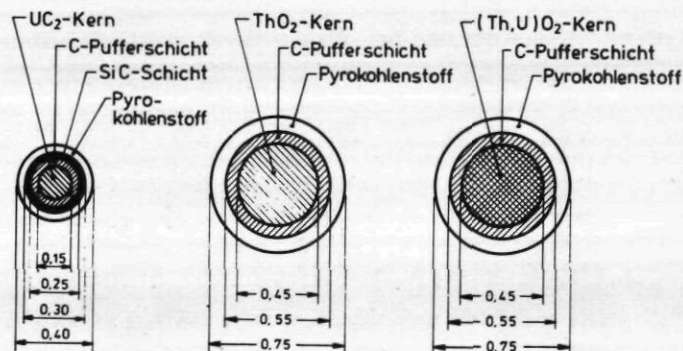


Abb. 1: Brennelementtypen für gasgekühlte Hochtemperaturreaktoren (Maße in mm) (Aufbau und exakte Abmessungen in [167] dokumentiert.)

stoffsystem vor. Weil nun hierbei die Uranpartikeln FEED<sup>(1)</sup> und die Thoriumpartikeln BREED<sup>(2)</sup> genannt werden, wird das Zweipartikelbrennstoffsystem FEED-BREED-System genannt.

Die Partikelkerne sind, um die im Kernreaktor entstehenden Spaltprodukte weitestgehend zurückzuhalten, beschichtet. Wahrscheinlich werden in Zukunft Schwermetallkerne mit drei Schichten umhüllt, eine innere mehrlagige poröse (brennbare) Schicht aus Kohlenstoff, eine dichte (unbrennbare) aus Siliciumcarbid (SiC) und eine äußere ebenfalls dichte (aber brennbare) aus Pyrokohlenstoff (PyC). Solche dreilagig ummantelten Kerne heißen auch TRISO-beschichtete Kerne. Ursprünglich waren nur zwei Schichten aus Kohlenstoff vorgesehen (keine SiC-Zwischenschicht), diese Kerne heißen BISO-beschichtete Kerne.

In der gängigen Terminologie werden FEED-BREED-Brennstoffsysteme oft durch die Art der Kernbeschichtung gekennzeichnet, z.B. das TRISO-TRISO- oder TRISO-BISO-Brennstoffsystem. Im ersten Fall sind beide Kernsorten TRISO-beschichtet und im 2. Fall nur die FEED-Partikeln, da in ihnen der Hauptanteil der Spaltprodukte entsteht. Die vorgeschlagenen Hauptvarianten bezüglich Brennstoffsystem und CP-Aufbau sind in Abb. 2 zusammengestellt.

### 1.3 Abgrenzung und Ziel des Berichtes

Dieser Bericht soll einen umfassenden Überblick zur Entwicklung von HEAD-END-Verfahren geben und den heutigen Wissensstand umreißen. Mit Hilfe einer ausführlichen Literaturangabe sind den Interessierten Möglichkeiten zum tieferen Einstieg in diese Problematik eröffnet, und somit werden die Voraussetzungen für eine eigene Meinungsbildung geschaffen.

- 
- (1) FEED: von feed: Futter. Uran hier hauptsächlich mit thermischen Neutronen spaltbares Uran-235 (Anreicherung über 90 %) wird verbraucht, gespalten  
(2) BREED: von breed: Brut, Thorium + Neutronen → U233, U233 wird gebrütet, Thorium ist Brutstoff

Brennstoff- system	Coated - Particles				
	Kern	HEU-Zyklus	Hülle	Kern LEU-Zyklus	Hülle
Einpartikel		(U,Th)O <sub>2</sub>	BISO oder TRISO	UO <sub>2</sub> (LEU-Zyklus)	TRISO
Zwei- partikel	FEED	(UO <sub>2</sub> ) UC <sub>2</sub> ; UC <sub>x</sub> O <sub>y</sub>	TRISO		
	BREED	ThO <sub>2</sub> (evtl. auch ThC <sub>2</sub> )	TRISO oder BISO		

Abb. 2: Möglicher Aufbau der coated particles für die einzelnen Brennstoff-  
systeme

Es werden untersuchte und denkbare Verfahren vorgestellt; ihre Eignung als HEAD-END-Prozeß wird beurteilt; dabei werden Folge- bzw. Vorprozesse nicht ausgeklammert.

In einem gesonderten Kapitel wird auf das C-14 Problem eingegangen; mögliche Auswirkungen auf das HEAD-END werden aufgezeigt.

Breiten Raum nimmt die Darstellung des Verbrennungs-HEAD-ENDs ein, da dieses Verfahren favorisiert wird.

## 2. VERFAHREN ZUR GRAPHIT-SCHWERMETALLTRENNUNG

Grundsätzlich sind zur Abtrennung von Teilchen, die in einer einheitlichen Matrix eingebettet sind, zwei Vorgehensweisen denkbar:

1. Physikalische Abtrennung einer der beiden Komponenten; es werden Kräfte benutzt (z. B. Erdanziehung, magnetische und elektrische Kräfte). Verfahren wären hierzu Sieben, Sichten, Flotieren, magnetische und elektrostatische Verfahren.
2. Chemische Umsetzung einer der beiden Komponenten, die dann als Gas oder Flüssigkeit das Reaktionsgefäß verlassen kann, es verbleibt die zweite Komponente. Verfahren hierzu wären selektiv Auflösen, Verbrennen, Vergasen, Verflüchtigen, Verflüssigen.

Unter dieser Einteilung sollen die untersuchten und denkbaren HEAD-END-Verfahren vorgestellt werden.

Literatur: (Gesamtdarstellung HEAD-END-Verfahren) [1,2,10].

### 2.1 Physikalische Trennmethode

Unter dem Begriff "physikalische Trennmethode" sollen alle Verfahren zusammengefaßt werden, bei denen die Abtrennung der

coated particles oder der Brennstoffkerne durch

- Siebung,
- Sichtung,
- Flotation bzw. auf
- magnetischem oder
- elektrostatischem Wege erfolgen soll.

Diese Verfahren zeichnen sich dadurch aus, daß sie im Prinzip relativ einfach und großtechnisch auf konventionellem Gebiet seit langem erprobt sind. Die Siebung, magnetische und elektrostatische Verfahren hätten den zusätzlichen Vorteil, ohne Chemikalien oder Zusatzstoffe wie Trägergase und Schwerkflußigkeiten auszukommen. Ein Trennverfahren dieser Art wäre unter dem Aspekt seines Einsatzes in einer Heißen Zelle besonders attraktiv.

Leider ist eine direkte Abtrennung der beschichteten oder "nackten" Schwermetallkerne vom Matrixgraphit der Brennelemente auf einem der genannten Wege bisher nicht gelungen.

Der Einsatz einer physikalischen Trennmethode ist nur möglich, wenn das zu trennende Ausgangsprodukt bestimmte Voraussetzungen erfüllt. Bei einem intakten Brennelement ist dies nicht der Fall. Aus diesem Grunde müssen die Brennelemente vorbehandelt werden, damit eines der Trennverfahren einsetzbar wird. Diese dem Trennprozeß vorgeschalteten Verfahren werden in der Literatur als Desintegrationsverfahren bezeichnet. Die Beschaffenheit des Zielproduktes einer solchen Desintegration wird für die einzelnen Trennmethoden unter 2.1.1 kurz dargestellt.

Leider muß der in der Literatur oft zu findende Optimismus, eines der genannten Trennverfahren in konventioneller Bauart einsetzen zu können, aus heutiger Sicht gedämpft werden, selbst dann, wenn ein Desintegrationsverfahren sich im Laborbetrieb als brauchbar erwiesen haben sollte. Man muß sich nämlich vergegenwärtigen, daß

- das Verhältnis Masse der abzutrennenden Wertstoffe zur Masse des Ballastmaterials etwa 1:10 beträgt,

- ein Trennprozeß eine C-Abtrennleistung von mindestens 110 kg/h erreichen muß und
- daß das Ballastmaterial Graphit in Form von Körnern, Pulver und Staub vorliegt, das zudem radioaktiv ist.

Die Schwierigkeit, die hinter der Bewältigung dieser Aufgabe steht, wird erst deutlich, wenn man berücksichtigt, daß für physikalische Trennmethode die Volumina der zu trennenden Stoffe ausschlaggebend sind. Der Dichteunterschied von Schwermetall zu Graphit beträgt ca. 5:1. Überschlüssig heißt das, aus 500 Volumeneinheiten schlecht handhabbaren Materials sind 10 Volumeneinheiten abzutrennen, dabei sind nennenswerte Verluste von Spalt- oder Brutstoff nicht zulässig.

#### 2.1.1 Trennverfahren

Im folgenden werden die Randbedingungen für den Einsatz der Trennverfahren kurz dargestellt. Experimentelle Untersuchungen wurden meist nur in geringem Umfang durchgeführt, da man davon ausging, daß nach einem Nachweis der grundsätzlichen Eignung eines Desintegrationsverfahrens dessen Umsatz in technische Dimensionen problemlos sein dürfte. Diese Annahme ist zu stark vereinfachend.

#### Sieben

Zwei Materialien können voneinander durch Sieben getrennt werden, wenn sie in einem Gemisch als diskrete Teilchen vorliegen und unterschiedliche Siebfraktionen bilden.

Sieben wäre ein attraktives Trennverfahren, wenn die Schwermetall-Partikelfraktion ein graphitfreies Oberkorn darstellen würde. Weiterhin dürfte kein Partikel- bzw. Kernbruch vorhanden sein. Bruchstücke würden abgesiebt werden. Die zu trennenden Materialien müßten trocken sein und nicht zum Kleben neigen. Für BISO-Partikel wäre dieses Trennverfahren interessant, wenn nur Schwermetallkerne abzusieben wären; für TRISO-Partikel müßte gefordert werden, daß kein Bruch vorhanden ist. Für diese

Partikelsorte ist eine Nachbehandlung zur Entfernung der inneren Kohlenstoffschicht erforderlich.

Eine Siebanlage erfordert die Installation eines Belüftungssystems, um den zwangsweise entstehenden feinen, schwebenden Staub abzusaugen. Dieser Staub würde sich sonst nach Beendigung des Siebprozesses auf die C-freie Fraktion niederschlagen und das erzielte Trennergebnis zunichte machen.

### Windsichten

Ein Gemisch aus unterschiedlichen Teilchen läßt sich durch Windsichten trennen, falls die Fraktionen unterschiedliche Dichten haben. Der Dichteunterschied zwischen Graphit ( $\sim 1,8 \text{ g cm}^{-3}$ ) und Schwermetall ( $\text{UO}_2$  bzw.  $\text{ThO}_2 \sim 10 \text{ g cm}^{-3}$ ) erlaubt eine saubere Trennung.

Dieser Dichteunterschied liegt jedoch nur unter Idealbedingungen vor. Er nimmt deutlich ab, wenn Kohlenstoff an den Kernen anhaftet. Technisch brauchbare Trennergebnisse lassen sich erzielen, wenn praktisch reine, von Kohlenstoffhüllen befreite Kerne vorliegen.

Für ein Windsichtverfahren muß gefordert werden, daß

- ein größtmäßig etwa einheitliches Korn und
- ein großer Dichteunterschied

vorliegen.

Zur Windsichtung ist ein Trägergas erforderlich, das gereinigt werden muß; dies stellt ein lösbares Problem dar.

Literatur: [8,9,25].

### Flotation

Die Trennung mit Hilfe eines Flotationsverfahrens ist wie das Sichten nur dann möglich, wenn zwischen den zu trennenden Stoffen ein großer Dichteunterschied vorhanden ist.

Als Flotationsmittel kommen Äthylbromid und -jodid in Betracht [10]. In [9] wurde Methyljodid eingesetzt. Der Einsatz dieser



Mittel ist nicht besonders intensiv untersucht worden, da sich das Hauptaugenmerk auf die Entwicklung eines Desintegrationsverfahrens richtete. Der Einfluß der Strahlung und der Spaltprodukte auf das Flotationsmittel wurde nicht näher erforscht, obwohl hier einige Risiken vorhanden sind wie z.B. Radiolyse und Bildung von Halogenwasserstoff. Ferner stört ein intensiver Jod-Isotopenaustausch zwischen radioaktivem Spalt-Jod und den Alkylverbindungen [10].

#### Elektrostatische Trennung

Über den Einsatz dieser Methode liegen nur spärliche Informationen vor. Sie wird als Verfahren zum Trennen von freien Kernen und abgesprengten PyC-Schalen günstig beurteilt [19].

Die meisten Desintegrationsmethoden lassen die PyC-Schicht der Partikeln wenigstens teilweise intakt. Es ist unwahrscheinlich, daß eine einigermaßen vollständige Trennung von Graphit und coated particles auf elektrostatischem Wege gelingt, da die Trennung auf unterschiedlicher Oberflächenleitfähigkeit der Komponenten des Gemisches beruht. Ein solcher Unterschied ist im vorliegenden Fall kaum gegeben.

#### Magnetische Trennung

Dieses Trennverfahren wurde nur zur Separierung der FEED- von den BREED-Partikeln untersucht [8]. Hierzu wird unter Kap. 5.4.4 berichtet. Ferner ist, wie Experimente gezeigt haben, eine magnetische Abscheidung des SiC-Hüllbruchs von reinen Uran-kernen möglich.

Die magnetische Abtrennung von beschichteten Partikeln aus einem Graphitgemisch liefert unbefriedigende Ergebnisse. Bei einem Versuch zur Abtrennung von ganzen Partikeln aus einem Graphitgemisch befanden sich nach der Trennung noch 5 Gew.-% Graphit in der Partikelcharge.

#### Schlußfolgerung

Zusammenfassend kann festgestellt werden, daß die Einsatzfähigkeit eines speziellen Trennverfahrens entscheidend von

der einwandfreien Desintegration der aufzuarbeitenden Brennelemente abhängt. Der kritische Pfad der physikalischen Stofftrennung liegt also nicht beim eigentlichen Trennschnitt, sondern vielmehr in der Vorstufe der Herstellung eines exakt trennbaren Gemisches aus kohlenstofffreien Brennstoffpartikeln und Matrixgraphit. Eine Auswertung der zugänglichen Informationen zeigt, daß eine wirklich brauchbare Lösung bisher nicht gefunden werden konnte. Dabei ist zu berücksichtigen, daß sich diese Erkenntnis nicht auf ein ausschließliches Literaturstudium begründet, sondern zusätzlich auf eigene experimentelle Beobachtungen und Erfahrungen beruht. In den Veröffentlichungen werden vielfach heute nicht mehr nachvollziehbare Gründe angeführt, die zur Ablehnung bzw. Aufgabe der Verfahren führten. Andererseits findet man subjektive Überschätzungen der Übertragbarkeit von wenigen Laborergebnissen auf eine technische Nutzanwendung.

Sieben und Windsichten haben heute eine Bedeutung als Teilstufe der HEAD-END-Prozesse; und dies vor allem bei kombinierten Prozessen (siehe Kap. 4.4) und bei der FEED-BREED-Trennung für das Zweipartikelbrennstoffsystem (Kap. 5.4.4).

Literatur: [8,9,10,25].

### 2.1.2 Desintegrationsverfahren für physikalische Trennprozesse

In der Zeit zwischen 1964 bis 1969 bemühte man sich in der Bundesrepublik Deutschland besonders intensiv, ein brauchbares Desintegrationsverfahren für graphithaltige HTR-Brennelemente ausfindig zu machen. Das Untersuchungsprogramm war sehr vielfältig und damit teilweise unübersichtlich [4], verschaffte aber ein breites Spektrum an Informationen für eine vergleichende Bewertung der verschiedenen Methoden. Die damals gesammelten Erfahrungen haben viel zu wenig Beachtung in der Fachwelt gefunden. Manche Diskussionen in der letzten Zeit über das Potential neu vorgeschlagener Brennelementkonzepte und möglicher Aufarbeitungsverfahren hätten sich andernfalls erübrigt.

Die deutsche Entwicklung verlief in der Zeit zwischen 1964 - 1969 zum größten Teil parallel zu amerikanischen Arbeiten, deren Umfang und Ergebnisse erst nach und nach bekannt und zugänglich wurden. Da fast alle Untersuchungen unabhängig voneinander durchgeführt wurden, können die Ergebnisse kritisch gegeneinander abgewogen werden und erlauben wichtige Rückschlüsse hinsichtlich ihres technischen Potentials.

Neben der Bundesrepublik Deutschland und den USA wurden in Großbritannien, Österreich und Italien Forschungsarbeiten zur Entwicklung von Desintegrationsverfahren durchgeführt. Folgende Verfahren wurden untersucht bzw. entwickelt:

1. Desintegration mit den Alkalimetallen Kalium, Rubidium und Caesium;
2. Desintegration mit Brom;
3. Desintegration mit Eisen-III-Chlorid ( $\text{FeCl}_3$ );
4. elektrolytische Desintegration;
5. oxydative chemische Zerlegung von Graphitbrennelementen und
6. mechanische Desintegration.

Die ersten vier Verfahren nutzen die Eigenschaft des Graphits aus, Einlagerungsverbindungen zu bilden, die zur Kristallgitteraufweitung führen.

Die Einlagerung der Fremdstoffe erfolgt bei vielen Substanzen durch spontane Reaktion der beiden Partner. Beispiele dafür sind die Alkalimetalle Kalium und Caesium sowie elementares Brom und Eisen-III-chlorid. Eine zweite Gruppe stellen die elektrolytischen lamellaren Graphitverbindungen dar, deren Bildung nicht spontan, sondern erst unter Zuhilfenahme eines zusätzlichen Oxydations- oder Reduktionsmittels zustande kommt. Der Elektrolyseprozeß eignet sich hierfür besonders gut.

Die oxydative chemische Zerlegung von Graphitbrennelementen beruht auf der unterschiedlichen Angriffswirkung eines Ge-

misches oxydierender Substanzen, vor allem Peroxyd-Verbindungen mit konzentrierter Schwefelsäure auf Graphit. Die oxydierende Zerlegung des Graphits wird vorwiegend durch einen Angriff an den Korngrenzen ausgelöst, wobei durch eine verstärkte Gasblasenbildung eine weitere Lockerung des Gefüges eintritt. Es handelt sich hier offensichtlich um denselben Effekt, der bei der elektrolytischen Graphitdesintegration als Bildung von Graphitoberflächenoxiden beschrieben wurde. Es muß aber bereits vorab festgestellt werden, daß die rein-chemische Zerlegung umso schwieriger gelingt, je dichter die Graphitmatrix ist.

Bei der mechanischen Desintegration wird versucht, durch Mahlen, Brechen oder Reiben das Brennelement zu zerlegen.

Im folgenden sollen die Verfahren näher beschrieben und beurteilt werden.

Literatur: (Übersichten von Desintegrationsverfahren) [4,5,10], [20,21,22,23,24,25,26].

#### 2.1.2.1 Desintegration mit Alkalimetallen

Durch die Bildung von Alkalimetall-Graphiteinlagerungsverbindungen erfährt die Gitterstruktur des Graphits und Kohlenstoffs eine Aufweitung, die zum Zerschlagen der Kristallite führen kann. Bei einem vollständigen Zerfall der Graphitmatrix eröffnet sich prinzipiell die Möglichkeit einer nachfolgenden Separierung der Brennstoffpartikeln vom Matrixgraphit bzw. von den Pyrokohlenstoffschalen.

Die Reaktion der Alkalimetalle Kalium, Rubidium und Caesium mit Graphit erfolgt spontan, die Herstellung der Alkalimetall-Graphitverbindungen gelingt sowohl durch Einwirkung gasförmigen als auch flüssigen Metalls auf Graphit und Pyrokohlenstoff. Die Alkaligraphite lassen sich auch aus gefügelosem Pyrokohlenstoff erhalten und daher erfolgt in diesem Falle neben der Zerstörung der Graphitmatrix auch eine mehr oder weniger vollständige Absprengung der Pyrokohlenstoffbeschichtungen. Bei oxidischen Brennstoffpartikeln lassen sich auf diese Weise

direkt die "nackten"  $(U,Th)O_2$ -Kerne erhalten, bei carbidischem Material erfolgt dagegen auch eine Teilreaktion der Alkalimetalle mit dem  $(U,Th)C_2$ , vor allem bei einem überstöchiometrischen C-Gehalt.

Etwas günstigere Verhältnisse hat man beim Vorliegen SiC-beschichteter Partikeln. Hier kommt die Reaktion an der SiC-Schicht zum Stillstand. Man erzielt dadurch eine saubere Trennung des Kernbrennstoffs vom Graphit, außerdem erleidet man keine Uran-Verluste durch "knock-out" und Diffusionsvorgänge in die äußere PyC-Schale hinein, da der Urantransport auf jeden Fall an der SiC-Schicht gestoppt wird.

Die Durchführung des Verfahrens gestaltet sich theoretisch sehr einfach. Die aufzuarbeitenden Proben werden in eine geeignete geschlossene Apparatur unter Sauerstoffausschluß eingeschleust und dort mit dem Alkalimetall bei Temperaturen von vorteilhafterweise ca.  $300^{\circ}C$  zur Reaktion gebracht. In diesem Temperaturbereich bildet sich die alkalimetallreichste Verbindung  $C_8Me$  ( $Me = Cs$  oder  $K$ ). Höhere Temperaturen sind nachteilig, da dann bereits eine Zersetzung zu metallärmeren Verbindungen einsetzt. Die Wirksamkeit von Caesium ist wesentlich größer als die des Kaliums. Alle Graphitsorten werden zerstört, allerdings ist die Zersetzungsgeschwindigkeit beim feinkristallinen Pyrokohlenstoff erheblich kleiner als beim Graphit. Besonders gute Pyrokohlenstoffbeschichtungen können dem Angriff des Kaliums manchmal widerstehen. Anschließend wird durch Erhitzen auf  $900 - 1000^{\circ}C$  das Caesium bzw. Kalium wieder nahezu quantitativ abgetrieben und zurückgewonnen. Geringe Verluste durch Nebenreaktionen der Alkalimetalle müssen allerdings in Kauf genommen werden.

Bezüglich der Einzelheiten des Verfahrens sowie der Kinetik des Reaktionsablaufes sei auf die Literatur verwiesen [19].

Es muß hier vermerkt werden, daß der Einsatz von Caesium zur Wiederaufarbeitung von HTR-Brennstoffen lediglich für lose, bereits vom Matrixgraphit befreite Brennstoffpartikeln geeignet ist und bei der Ausarbeitung eines entsprechenden Verfahrens auch nur daran gedacht wurde. Zur Aufarbeitung ganzer

synthetischer Brennelementkugeln bzw. von sog. Compacts scheidet der Einsatz von Caesium aus, da der hohe Preis des Metalls wirtschaftlich untragbar ist. Bei jedem Zersetzungs Vorgang treten nämlich geringe irreversible Caesium-Verluste auf.

Günstiger liegen in dieser Hinsicht die Verhältnisse beim Kalium. Die Reaktionsgeschwindigkeit ist zwar langsamer, aber zur vollständigen Zerstörung der Graphitmatrix rasch genug. Die auftretenden Kaliumverluste wären wirtschaftlich tragbar.

Nachteile des Verfahrens sind:

1. Die Reaktion verläuft sehr langsam, die Zerlegung eines Kugelbrennelementes benötigt mit dem "schnellsten" Desintegrationsmittel Cs mehrere Stunden, die Rückgewinnung des Cs aus dem Graphit dauert ca. 3 - 4 Stunden bei einer Temperatur von ca. 1000°C.
2. Alle Alkalimetalle reagieren sehr gut mit Sauerstoff und Feuchtigkeit, das Feuer- und Explosionsrisiko ist sehr hoch, so daß der Prozeß nur in autoklavenähnlichen Gefäßen durchgeführt werden darf. Es werden also aufwendige Einrichtungen zum Beschicken, Entleeren, Evakuieren und Spülen nötig.
3. Ein ungelöstes Problem ist der Isotopenaustausch zwischen radioaktiven Cs-Spaltnukliden und dem stabilen Cs-133 des Desintegrationsmittels.
4. Die durch diese Verfahren gewonnenen Produkte können nur äußerst schwierig auf physikalischem Wege getrennt werden.

Literatur: [25,19,10].

#### 2.1.2.2 Desintegration mit Brom

Für das Aufschließen von Graphitbrennelementen wurde auch Brom vorgeschlagen [3] und im Labormaßstab erprobt. Die Reaktion verläuft zwischen 80 - 170°C, für die Zerlegung eines Kugelbrennelementes benötigt man ca. 2 Stunden, dabei werden die

PyC-Schichten der Brennstoffkerne nicht angegriffen. Das Brom kann aus der verbleibenden Graphitmasse größtenteils zurückgewonnen werden.

Der Umgang mit Brom ist im Vergleich zu den Alkalimetallen mit einem geringeren Gefahrenrisiko verbunden. Das durch Bromieren der Brennelemente gewonnene Produkt ist aber nicht direkt physikalisch trennbar. Die Brennelementkugeln zerfallen durch ein grobschaliges Aufblähen und anschließendem Zerschlagen des Graphits [25, KFA-ICT-Teil, S.13]. Eine nötige Nachbehandlung wie z.B. kontrolliertes Nachmahlen würde nur unerwünschten Partikelbruch erzeugen und so erst recht eine physikalische Trennung unmöglich machen.

Literatur: [3,10,25].

#### 2.1.2.3 Desintegration mit Eisen-III-Chlorid

Der Reaktionsmechanismus der Desintegration mit  $\text{FeCl}_3$  verläuft ähnlich wie bei den Alkalimetallen. Wegen der gegenüber den Alkalimetallen geringeren Beständigkeit der Einlagerungsverbindungen im Graphit ist zu erwarten, daß der Wiederausdampfungsschritt des  $\text{FeCl}_3$  aus Graphit bei Temperaturen erfolgen kann, die nicht wesentlich über denjenigen der Einlagerungstemperaturen liegen. Dies bedeutet einen verfahrenstechnischen Vorteil im Hinblick auf Energiekosten und Werkstoffprobleme. Die Handhabung von  $\text{FeCl}_3$  ist weit weniger gefährlich als die der Alkalimetalle. Nachteilig ist hingegen die extrem hohe Korrosivität. Die Trennung des Desintegrationsproduktes durch Windsichten lieferte befriedigende Ergebnisse für unbestrahltes Material. Versuche mit bestrahlten Brennelementen zeigten aber, daß das durch eine  $\text{FeCl}_3$ -Behandlung gewonnene Material nicht mehr durch Windsichtung trennbar ist.

Literatur: [25,10].

#### 2.1.2.4 Elektrolytische Desintegration

In [25] wird das Verfahren folgendermaßen beschrieben und beurteilt:

Das Verfahren wurde ursprünglich vom DRAGON-Projekt vorgeschlagen [30-33]. Eine elektrolytische Graphitzersetzung kann prinzipiell nach zwei verschiedenen Methoden erfolgen:

Im ersten Fall bringt man den Graphitkörper zwischen zwei Metallelektroden, die ebenso wie der Graphit ganz in das Elektrolysebad eintauchen. Der Graphit hat dabei keinerlei direkte Verbindung mit den Elektroden. Bei einer zweiten Anordnung dient der Graphitkörper selbst als Anode, die sich während des Elektrolyseprozesses durch Zerfall aufbraucht. Für eine effektive Graphit-Desintegration ist nur die zweite Anordnung sinnvoll. Die Energieausbeuten liegen hier etwa zehnmal höher, außerdem ist auch die Zersetzungsgeschwindigkeit wesentlich größer.

Die Anode besteht demnach aus Graphit. Als bestes Kathodenmaterial hat sich Platin erwiesen. Es zeigt die höchste Korrosionsbeständigkeit gegen den Säureelektrolyten, außerdem ergeben sich an Platin für den Prozeß günstigere Zersetzungspotentiale. Optimale Stromausbeuten für die Graphit-Desintegration erzielt man bei Anwendung kleiner Kathodenoberflächen im Vergleich zur Graphitanode. Es stellen sich dadurch relativ hohe Stromdichten an der Kathode ein. Auf diese Weise tritt neben dem elektrolytischen Desintegrationsprozeß (= anodische Oxidation) nur eine verhältnismäßig geringe Wasserelektrolyse als unerwünschter Nebenprozeß auf.

Um die Zersetzung der Graphitanoden durch Graphitverbindungs-  
bildung zu beschleunigen, wurde die zusätzliche mechanische  
Einwirkung eines Wechselstromvibrators (50 Hz) und Ultraschall (17 - 25 kHz) untersucht. Beide Methoden zeigen einen positiven Einfluß. In ihrer Wirksamkeit sind sie etwa gleichwertig. Die Anwendung von Ultraschall ist weniger vorteilhaft, da sie zu einer teilweise sehr feinen Graphitverteilung führt, die eine Abscheidung erschwert.

Die zu den Versuchen verwendete Apparatur ist in Abb. 3 schematisch dargestellt.



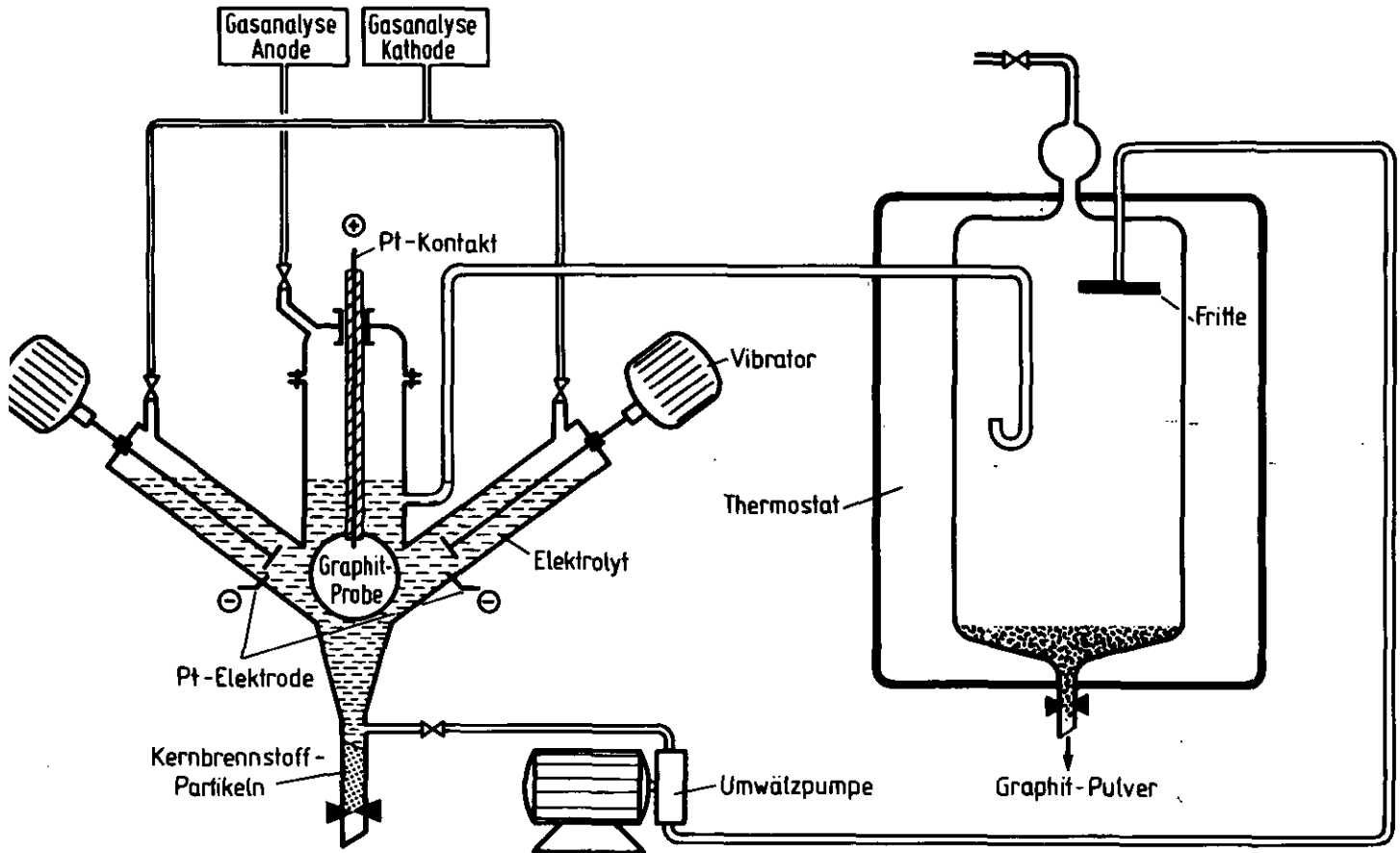


Abb. 3: Versuchsanordnung zur elektrolytischen Graphit-Desintegration

Die Ursache für den raschen Zerfall des Graphitgitters bei der Elektrolyse ist nach den vorliegenden Ergebnissen offensichtlich auf ein optimales Zusammenwirken von drei Effekten zurückzuführen:

1. Oxidation des Kohlenstoffs an den Korngrenzen des Graphitkörpers, die im Normalfall zur Bildung von  $\text{CO}_2$  an der Anode führt. Diese Reaktion bewirkt durch die Bildung von Graphitoberflächenoxiden eine Auflockerung des Kristallitgefüges.
2. Bildung von Graphiteinlagerungsverbindungen mit den Anionen des Elektrolyten, die zu einer Aufweitung und damit Zerstörung des Kristallgitters führen. Je großkristalliner eine Graphitsorte ist,

desto rascher und vollständiger erfolgt der Zerfall.

Beim polykristallinen Pyrokohlenstoff tritt zwar ebenfalls eine, wenn auch langsamer verlaufende Aufweitung des C-Netzgitters in der c-Achse auf, ein völliges Auseinanderbrechen des Graphitkristalls tritt jedoch nicht auf. Daher gelingt durch eine elektrolytische Desintegration eine partielle Zersetzung des Matrixgraphits der Brennelementkugeln, während die mit Pyrokohlenstoff umhüllten Brennstoffpartikeln praktisch heil bleiben.

3. Vorliegen einer starken Säure. Die Beständigkeit der einzelnen Graphit-Schwefelsäureverbindungen hängt in starkem Maße von der Schwefelsäurekonzentration ab. Je höher die Säurekonzentration ist, eine desto schwefelsäurereichere Stufe erhält man und damit eine stärkere Zersetzungswirkung.

Für die praktische Anwendung der elektrolytischen Graphitdesintegration auf die Aufarbeitung bestrahlter Brennelementkugeln spielt die Kornverteilung des abgeschiedenen Graphits eine wichtige Rolle. Sie soll etwas kleiner als der Partikeldurchmesser der Brennstoffteilchen sein, da nur dann eine saubere Trennung zwischen beiden Komponenten gewährleistet ist. Die Kornfeinheit muß eine Funktion der bei der Elektrolyse aufgewandeten Stromleistung sein, wie es experimentell dann auch bestätigt wurde.

#### Schlußfolgerungen für einen technologischen Einsatz

Auf der Grundlage der geschilderten Erkenntnisse läßt sich eine einigermaßen brauchbare Beurteilung über die technischen Erfolgsaussichten der elektrolytischen Desintegration zur Wiederaufarbeitung graphithaltiger Brennelemente abgeben. Insgesamt betrachtet sind sie nicht besonders gut, und daher wurde das Verfahren nicht mehr weiter verfolgt. Diese Aussage gründet sich auf folgende Tatsachen:

1. Der Zersetzungsvorgang verläuft zu langsam. Eine Beschleunigung des Prozesses durch die Anwendung hoher Säurekonzentration und Stromdichte führt zwar zu einer technisch tragbaren Desintegrationsgeschwindigkeit, gleichzeitig erhält man leider eine sehr grobe Graphitzerteilung, die eine auch nur annähernd quantitative Trennung von Matrixgraphit und Kernbrennstoffpartikeln verhindert. Um das zu vermeiden, muß man lange Zersetzungszeiten bei hohen Stromleistungen aufwenden.
2. Der geschilderte Reaktionsmechanismus gestattet zwar eine vollständige Zerstörung der Graphitmatrix einer Brennelementkugel unter Erhaltung der pyrokohlenstoffumhüllten Brennstoffpartikeln. Eine gewisse Reaktion durch Gitteraufweitung und gelegentlich sogar eine Zerstörung der Beschichtungen bereitet jedoch Unannehmlichkeiten. Es ist zu befürchten, daß an stark abgebranntem Material die teilweise Zerstörung noch wesentlich stärker in Erscheinung tritt. Durch chemische Reaktion mit dem  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Elektrolyten erfolgt an den defekten Partikeln eine Uranauslaugung. Um Uranverluste zu vermeiden, müßte auch der Elektrolyt aufgearbeitet werden.
3. Eine wirksame Trennung der Komponenten durch Flotation in konzentrierter Schwefelsäure ist mit erheblichem Aufwand verbunden. Bessere Trennerfolge lassen sich dadurch erzielen, daß man das gesamte Zersetzungsprodukt (Partikeln und Graphit) zunächst vollkommen bei ca.  $400^\circ\text{C}$  trocknet und dann eine Trennung durch Windsichten vornimmt. Allerdings brechen bei diesem Trockenprozeß ein erheblicher Anteil der Beschichtungen von den Partikelkernen ab. Man läuft dadurch wiederum Gefahr, auf diese Weise zu große Uranverluste in den abgebrochenen Schalen zu erleiden.
4. Sorgen bereitet die Wahl eines geeigneten Werkstoffs. Er muß drei Bedingungen erfüllen: nämlich korrosions- und strahlenbeständig sein und außerdem darf das Ma-

terial den Strom nicht leiten. Die Bedingungen werden praktisch von keinem heute bekannten Werkstoff erfüllt. Glas und Kunststoffe eignen sich noch am besten, ihre Strahlenbeständigkeit bzw. mechanische Stabilität ist jedoch mangelhaft. Keramische Materialien sind schwer in den benötigten Apparateformen herzustellen.

5. Nicht ganz einfach dürfte die technische Ausführung der Elektrolysezellen sein. Der Apparat muß, um hohe Durchsätze zu gewährleisten, aus vielen Einzelzellen zusammengesetzt werden, die parallel zu schalten sind. Schwierig ist auch die elektrische Kontaktierung der Graphitanoden. Es besteht die Gefahr, daß kleinere unzersetzte Reste zurückbleiben.

Literatur: [3,25,30,31,32,33,34].

#### 2.1.2.5 Oxydative chemische Desintegration

Verschiedentlich wurde der Vorschlag gemacht, eine Zerlegung der Brennelementkugeln oder der sog. Compacts auf rein chemischem Wege vorzunehmen. Entsprechende Versuche wurden in der KFA-Jülich durchgeführt.

Als Agenzien zur chemischen Zerlegung von Graphitkugeln wurden folgende oxydierende Substanzen eingesetzt und ausprobiert:

- a) konz. Schwefelsäure im Gemisch mit Chromsäureanhydrid,  $\text{CrO}_3$ ;
- b) konz. Salpetersäure im Gemisch mit Blei (IV)-oxid,  $\text{PbO}_2$ ;
- c) konz. Salpetersäure im Gemisch mit Oleum;
- d) konz. Schwefelsäure im Gemisch mit Ammoniumperoxydisulfat  $(\text{NH}_4)_2 \text{S}_2\text{O}_8$ .

Eine mehr oder weniger zufriedenstellende Zerlegung der Graphitbrennelemente erfolgt in jedem Falle. Am besten eignen sich die Methoden a) und d). Es ist trotzdem völlig aussichtslos, eine derartige Methode zum technischen Einsatz bringen zu wollen. Die Verfahren eignen sich allenfalls für analytische Zwecke. Die zur Auflösung bzw. Desintegration benötigten Mengen oxy-

dierend wirkender Chemikalien sind wirtschaftlich nicht tragbar. Außerdem belastet ihre hohe Konzentration den gesamten anschließenden Trennungsprozeß oder macht ihn sogar völlig funktionsunfähig.

Literatur: [35,25]

#### 2.1.2.6 Mechanische Desintegration

Die prinzipiell einfachste Methode der Desintegration stellt das mechanische Zerschlagen der Brennelemente in einer Hammer- oder Walzenmühle dar. Eine wichtige Voraussetzung ist dabei, daß die Partikeln intakt bleiben und ferner ihre Abtrennung möglich ist. Entsprechende Versuche zeigten die Grenzen des Verfahrens auf, sie eignen sich nur für eine grobe Vorabtrennung des Graphits durch Sieben und Sichtung [9].

Im Jahre 1979 wurden die Untersuchungen hierzu erneut unter Anwendung einer geänderten Arbeitstechnik aufgenommen. Ergebnisse liegen bisher nur für unbestrahlte Brennelemente vor [36]. Es wurde eine 2-stufige Desintegration, genannt Schäl-Bürst-Brech-Aufbereitung, vorgeschlagen. Dieses Verfahren eignet sich nur für Kugelbrennelemente mit TRISO-beschichteten Brennstoffkernen. Es ist dadurch gekennzeichnet, daß in einem ersten Schritt die brennstofffreie Randzone abgeschält wird und in einem zweiten Schritt die beladene Zone zerbürstet wird. Das neuartige Kernstück dieses Verfahrens ist der zweite Schritt, die Bürst-Desintegration.

Bei diesem neuartigen Verfahren löst eine rotierende Rundbürste die Brennelementkugeln nach und nach auf. Aufgrund der unterschiedlichen Härtegrade von Graphit und Partikelbeschichtung, insbesondere der sehr harten SiC-Schicht, streichen die Enden der Stahlborsten über die Bearbeitungsfläche, wodurch sie feinen Graphitstaub abritzen. Sie werden aber, stoßen sie auf Brennpartikeln, von dessen SiC-Schicht abgelenkt und "umfahren" das Teilchen, das schließlich - soweit freigelegt - der von den Borsten ausgeübten Kraft nicht mehr widerstehen kann und aus dem Matrixverbund herausfällt.

Das Bürstgut enthält einmal die bis auf die SiC-Schicht freigebürsteten Partikeln und zum anderen feinen Graphitstaub, dessen Korngröße kleiner als  $63\text{ }\mu\text{m}$  ist. Die Korngröße der Partikelfraktion liegt je nach Partikelsystem im Bereich zwischen 500 und  $1200\text{ }\mu\text{m}$ . Diese Größenverteilung des Bürstgutes hat dessen leichte Graphit-Schwermetall-Trennbarkeit zur Folge.

Der gleiche, partikelschonende Abriebmechanismus tritt natürlich auch bei BISO-beschichteten  $\text{ThO}_2$ -Partikeln auf, jedoch fehlt hier der Schutz der SiC-Hüllenschicht. Die Stahlborsten werden erst am Kern selbst abgelenkt, wodurch ein minimaler Abrieb des Kernmaterials erfolgt.

Abbildung 4 zeigt, wie sauber die Brennstoffpartikeln freigebürstet werden. Die größeren Partikel sind bis auf die SiC-Schicht abgebürstete Feed-Partikel, während die kleineren nur noch aus  $\text{ThO}_2$ -Kernen der Breed-Partikel bestehen.

Durch den beschriebenen Bürstmechanismus sind die CP weder einer plötzlichen Schlag- und Prallwirkung wie bei einer Hammermühle, noch einer hohen Druckbelastung, wie bei einem Backenbrecher oder einer Walzenmühle ausgesetzt. Daraus folgt eine im Vergleich zu diesen Mahlverfahren niedrigere SiC-Hüllenbruchrate.

Vergleichende Verfahren mit kalten BE, die mit TRISO-Mischoxid beladen waren, lieferten folgende Bruchraten:

Hammermühle:	60 - 80 % bei $d_m = 1200\text{ }\mu\text{m}$
Backenbrecher:	20 - 25 % bei $d_m = 1200\text{ }\mu\text{m}$
Siebgut:	2 - 3 % bei verschiedener Korngrößenverteilung

Einen gewichtigen Einfluß auf die Abbürstrate hat die Größe der zu bebürstenden Fläche. Es ist deshalb aus Materialentlastungsgründen der Stahlborsten bzw. zur Erzielung einer höheren Umsatzrate vorteilhaft, bereits abgeschälte BE aufzubürsten. Darunter sind Kugel-BE zu verstehen, bei denen die äußere brennstofffreie Graphitzone entfernt ist.

Abbildung 6 zeigt eine Prinzipskizze der Kugelaufbürstmaschine.



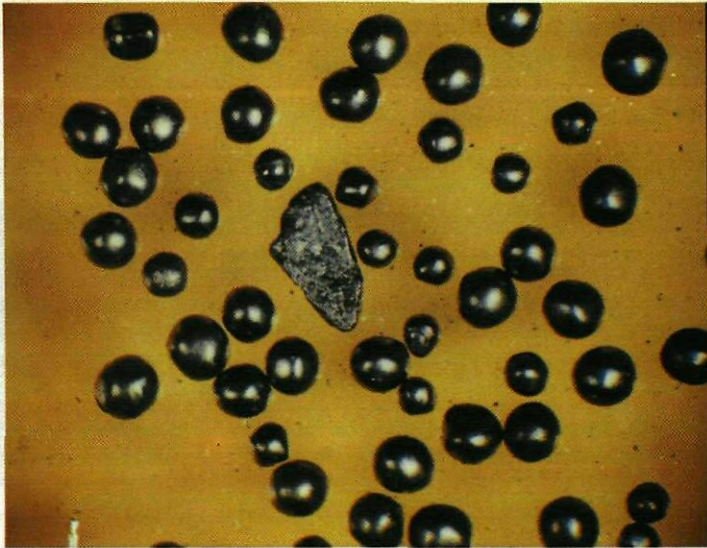


Abb. 4: Freigebürstete Feed-Breed-CP

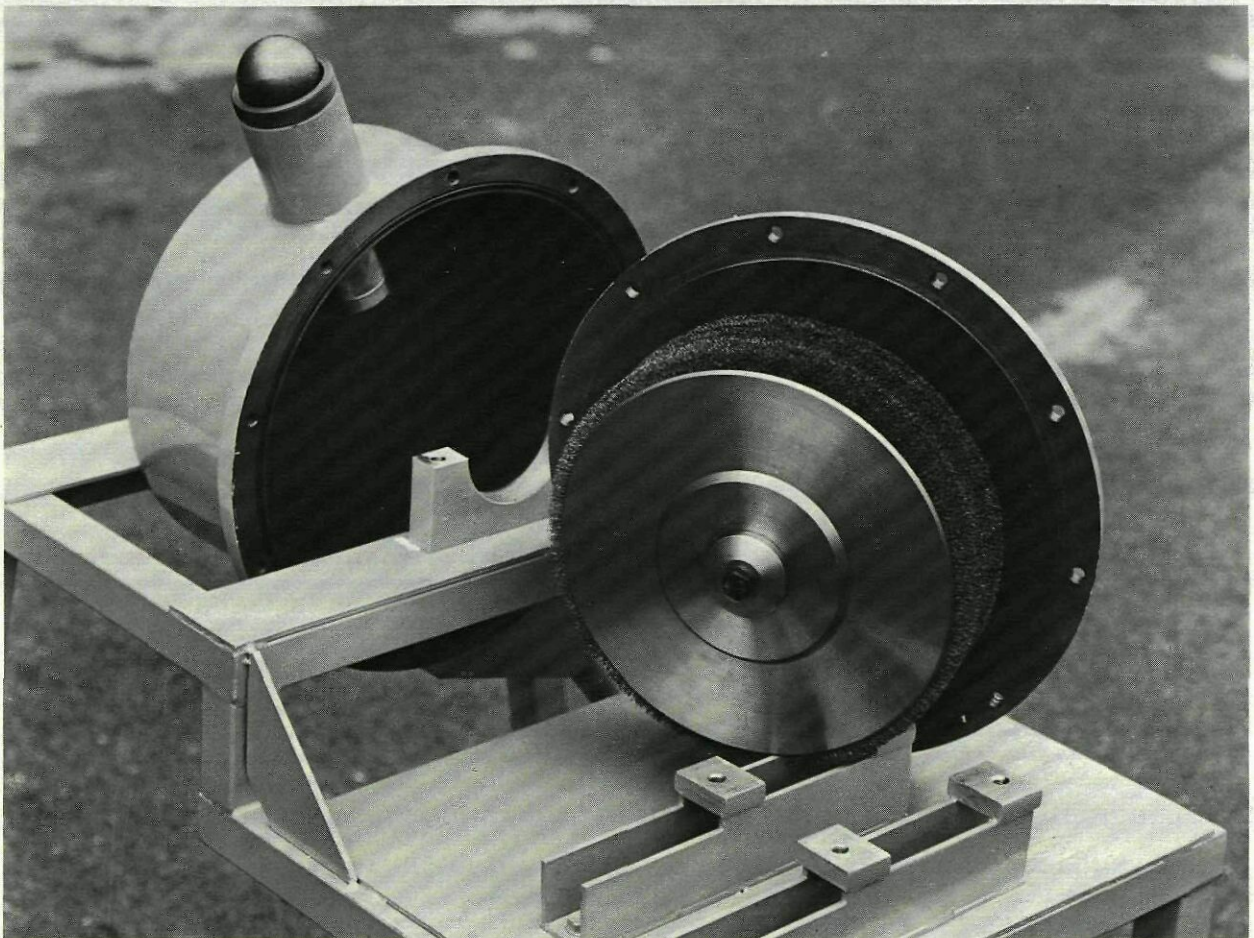


Abb. 5: Offene Versuchskugelabbürstmaschine

Die Rundbürste (1) dreht sich um eine vertikale Achse (2). Die Bürste ist entweder als Einzelstück gesondert angefertigt oder setzt sich aus mehreren handelsüblichen Bürsten (z.B. 25 x 4 cm breite Bürsten) zusammen. Unten liegen sie auf einem fest mit der Antriebswelle verbundenen Trageteller (3) auf; oben sind sie ebenfalls über eine Anpreßplatte mit einer Schraubverbindung (4) befestigt. Der Rechteckquerschnitt der Antriebswelle gewährleistet den Kraftschluß auf die Rundbürste.

Auf einem Ständer (5) mit einer Grundplatte (6) sitzt das untere Lagergehäuse (7) eines Traglagers als Axial-Pendelrollenlager (8) mit entsprechenden Dichtungselementen. Das zylindrische Gehäuse (9) der Bürste steht auf mehreren Tragrippen (10). Es besteht aus Bodenplatte, Gehäusemantel und Deckel.

In der Bodenplatte (11) sind Austragsöffnungen (12) für das zu bearbeitende Gut gebohrt. Dieses muß wegen der extrem schlechten Fließfähigkeit im Umluftbetrieb abgesaugt werden.

Der Gehäusedeckel (13) ist aufgeflanscht und für den Bürstwechsel schnell abschraubbar. Er nimmt das Gehäuse für das obere Radiallager samt Dichtungselemente (14) auf. Über aufgeschweißten Kugelschleusen (15) wird die Maschine beladen.

Im oberen Teil des Gehäusemantels befinden sich die Eintrittsöffnungen für das Transportgas (16). Weiterhin hat der Gehäusemantel die Funktion, die Kugelandrückvorrichtungen (17) aufzunehmen. Dazu ist er über die gesamte Höhe der Bürste käfigartig ausgeführt. Bei einem Bürstdurchmesser von 30 cm und einer Bürsthöhe von 100 cm können leicht 9 solcher Vorrichtungen von außen an den verstärkten Käfigleisten des Gehäusemantels (18) angeschraubt werden, so daß ein insgesamt staubdichter Arbeitsraum entsteht.

Ein elektro-magnetischer Schieber (19) bildet das unterste Element einer jeden Kugelandrückvorrichtung. Er verhindert im geschlossenen Zustand, daß die beim Beladungsvorgang über die Kugelschleusen zugeführten BE durch das vertikal angebrachte, aus Stahlblechen gebildete U-Profil fallen und durch die Bürstgutaustrittsöffnungen die Maschine unbearbeitet verlassen. Die Bürste begrenzt die offene Seite des U-Profils. Hier be-





findet sich die eigentliche Arbeitszone.

Ein Schenkel des U-Profils ist als Halteplatte (20) zur Aufnahme weiterer Bauelemente der Kugelandrückvorrichtung (20 hydraulische Zylinder pro Vorrichtung) ausgeführt und ragt radial etwa 15 - 20 cm vom Gehäuse weg.

Befinden sich am Ende eines Beladungsvorgangs, so wie im Aufriß von Abbildung 6 dargestellt, in jeder Kugelandrückvorrichtung 20 reduzierte BE im Arbeitsraum, gebildet vom U-Profil und Rundbürste, so wird gleichzeitig Druck auf die hydraulischen Zylinder (21) gegeben. Die daraus resultierenden Kräfte werden über Stangen auf die Andrückhülsen (22) weitergeleitet, die die BE an die sich drehende Bürste pressen.

Das Ende einer jeweiligen Andrückhülse ist als scharfe Lochblende ausgeführt, die mit Hilfe des aufgebrachten Druckes das jeweilige BE während des Bürstvorgangs hält und zentriert und dessen Rotation verhindert. Die Andrückhülsen werden durch Bohrungen im entsprechenden Stahlblech geführt. An ihren Enden verhindern Anschläge, daß die Blenden gegen Ende eines Bürstvorganges von den Stahlborsten der Bürste gestreift werden.

Dieser erprobte Mechanismus eignet sich vor allem für die mit einer Kugelschälfräse reduzierten BE, da diese durch ihre Oberflächenrauigkeit der unerwünschten Kugelrotation verstärkt entgegenwirken.

Aus der Geometrie der Lochblenden ergeben sich am Ende des Bürstvorganges kleine unaufgebürstete Kugelkappen von etwa 5 - 7 Gramm.

Wird dann der Druck in den hydraulischen Zylindern entspannt, gelangen die Andrückhülsen in ihre Ausgangsposition, wobei die Kugelkappen bei geöffnetem Schieber (19) ebenfalls über die Ausgangsöffnung (12) abgezogen werden.

Eine mit der Kugelaufbürstmaschine durchgeführte Bürst-Desintegration weist gegenüber herkömmlichen Zerkleinerungsverfahren folgende Eigenschaften auf:

Durch einen partikelschonenden Abriebmechanismus werden abgeschälte BE bis auf einen Rest kleiner

7 Gramm desintegriert.

Das dabei entstehende Bürstgut zeichnet sich durch ideale Graphit-CP-Trennbarkeit aus.

Das Bürstgut besitzt wegen der geringen Korngröße des Graphitstaubes eine extrem schlechte Fließfähigkeit.

Um im Head-End über eine Bürst-Desintegration eine reine Schwermetall-Fraktion zu gewinnen, sind also zusätzlich zu dem zentralen, bestimmenden Bürst-Desintegrationsverfahren weitere Verfahrensschritte nötig. Als besonders angebracht erweist sich dazu die Schäl-Bürst-Brech-Aufbereitung (Abb. 7).

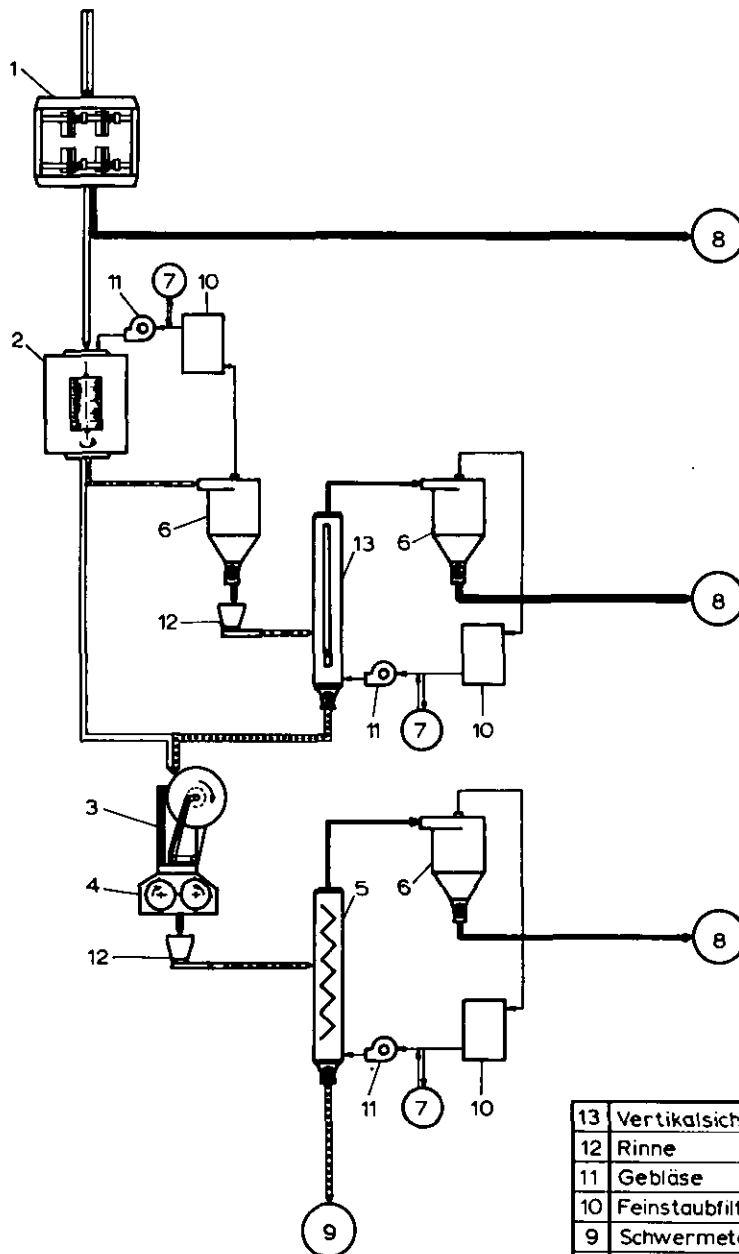
Der vorgeschlagene Gesamtprozeß sieht folgendermaßen aus (Abb. 7):

Erste Bearbeitungsstufe ist das Kugelschälen, wobei die brennstofffreie Zone in einer Kugelschälvorrichtung (1) abgetrennt und der anfallende Graphit (~ 82 g) direkt der Graphitverfestigung (8) zugeführt wird. Wegen der Oberflächenbeschaffenheit der in einer Kugelschälfräse geschälten Brennelemente eignet diese sich besonders, da sie den Andrückmechanismus der Kugelaufbürstmaschine (2) verbessert.

Diese wird über Fallrohre und Kugelschleusen mit den abgeschälten BE (~ 126 g) beladen. Das anfallende Bürstgut wird pneumatisch über einen Hochleistungszyklon mit aufgesetzten Filterkerzen (6) abgeschieden und über eine Zellenradschleuse und Dosierrinne (12) einem Vertikalsichter (13) zugeführt.

Hier erfolgt eine scharfe Graphit-CP-Trennung. Etwa weitere 98 Gramm schwermetallfreier Matrixgraphit werden pro BE im Zyklon (6) abgeschieden und ebenfalls zu einem endlagerfähigem Abfallprodukt verfestigt. Die CP (~ 21 g) fallen im Sichtstrom nach unten aus, Zellenradschleuse und Dosierschnecke besorgen ihren Transport zu der dritten Bearbeitungsstufe.

Diese hat die doppelte Aufgabe, den verbliebenen Kugelrest zu zerkleinern und die darin noch enthaltenen Brennstoffkerne freizulegen. Eine Kombination aus Backenbrecher (3) zur Grobzer-



- aufzuarbeitendes Kugelbremelement
- reduziertes Kugelbremelement
- abzulagernder Graphit
- - - Zerkleinerungsprodukt
- - - Schwermetallfraktion

13	Vertikalsichter
12	Rinne
11	Gebläse
10	Feinstaubfilter
9	Schwermetallweiterverarbeitung
8	Graphitverfestigung
7	Sichtgasreinigung
6	Zyklon
5	Zick-Zack-Sichter
4	Walzenmühle
3	Backenbrecher
2	Bürstmaschine
1	Kugelschälvorrichtung

Abb. 7: Verfahrensfließbild der Schäl-Bürst-Brech-Aufbereitung

kleinerung der kleinen Kugelkappen und darunterliegender Walzenmühle (4) zum Brennstoffaufschluß durch Schalenaufbrechen erfüllt diese Forderung zufriedenstellend.

Insgesamt werden hier durchschnittlich 28 Gramm pro BE zerkleinert. Eine letzte Windsichtung im Zick-Zack-Sichter (5) separiert nochmals 14 Gramm Feingut von der Schwermetall-Fraktion.

Bei der Schäl-Bürst-Brech-Aufbereitung, die nur über geschlossene Sichtgaskreisläufe verfügt, braucht deshalb keine eigene Abgasreinigung entwickelt zu werden. Es bietet sich prinzipiell die Möglichkeit, die Sichtgasreinigung an die Auflöserabgasreinigung anzukoppeln. Das Sichtgas kann dabei nur unter dem Gesichtspunkt einer wirkungsvollen Reinigung des Auflöserabgases (z.B. Inertgas) ausgewählt werden.

Wegen der geringen verbleibenden Graphit- und SiC-Verunreinigung der hergestellten Schwermetall-Fraktion werden durch die Schäl-Bürst-Brech-Aufbereitung die den Grind-Leach-Prozeß störenden  $\text{HNO}_3$ -Graphit-Reaktionen erheblich reduziert.

Die Tatsache, daß bei der Schäl-Bürst-Brech-Aufbereitung alle Verfahrensprozesse bei Raumtemperatur und Normaldruck vonstatten gehen, erleichtert ihre sicherheitstechnische Auslegung für einen Heiß-Zellen-Betrieb.

Die Untersuchungen zu diesem Verfahren werden für unbestrahlte Brennelemente im Laufe des Jahres 1981 abgeschlossen [11,12]. Eine abschließende Wertung kann aber auch dann noch nicht vorgenommen werden, da es unbedingt auch mit bestrahlten Brennelementen erprobt und untersucht werden muß. Es ist zu befürchten, daß bei bestrahlten Brennelementen die Brennstoffpartikeln leichter zerstört werden, somit würde dieses Verfahren deutlich an Attraktivität verlieren. Ferner sind wichtige Materialfragen ungeklärt, wie z.B. die Standzeiten der Bürsten.

Literatur: [36,11,12,9].

### 2.1.3 Zusammenfassung

Physikalische Methoden zur Graphit-Brennstoffpartikeln-Trennung scheiden als universelle HEAD-END-Verfahren aus. Hauptgrund hierfür ist nicht der Trennprozeß an sich, sondern die Herstellung eines trennbaren Gemisches. Hinzu kommt, daß einige Desintegrationsmittel entweder schwierig handhabbare Chemikalien benötigen oder zusätzlich an nahezu unlösbaren Werkstoffproblemen scheitern würden.

Ein neuartiges mechanisches Desintegrationsverfahren hat zwar erhebliche Vorteile gegenüber früher untersuchten und hat auch bereits für unbestrahlte Brennelemente seine Tauglichkeit im Labormaßstab gezeigt, seine Eignung muß es aber erst noch mit bestrahltem Material demonstrieren.

### 2.2 Chemische Trennmethoden

Zur chemischen Schwermetall-Graphit-Trennung bieten sich zwei Grundprinzipien an:

1. Umsetzen des Schwermetalls und
2. Umsetzen des Graphits.

Die Schwermetallumsetzung ist ohne eine Vorbehandlung der Brennelemente nicht durchführbar; es muß gewährleistet werden, daß das Schwermetall dem chemischen Reaktionsmittel ausgesetzt werden kann. Zieht man den Brennelementaufbau und die Mehrfachumhüllung der Brenn- und Brutstoffpartikeln in Betracht, so bieten sich hierfür Feinmahlen oder Brechen der Brennelemente an.

Die Graphitumsetzung benötigt für TRISO-beladene Brennelemente einen zusätzlichen Zwischenschritt. Die SiC-Hüllen sind chemisch sehr resistent, daher müssen sie entweder mechanisch abgetrennt oder zumindest aufgebrochen werden, damit anschließend die Entfernung der inneren Kohlenstoffumhüllung ermöglicht wird.

Weder die Vorbehandlung für die Schwermetallumsetzung noch der Zwischenschritt für das Aufbrechen der SiC-Schalen einschließ-

lich der nachfolgenden Graphitumsetzung sind aus heutiger Sicht problematisch.

Im Gegensatz zu den physikalischen Trennmethoden liegt hier das Hauptproblem in der Trennstufe und nicht in der Vorbehandlung der Brennelemente.

### 2.2.1 Chemische Trennmethoden durch Umsetzen des Schwermetalls

Es wurden drei Verfahren untersucht, mit denen man die Abtrennung des Graphits durch chemische Umsetzung des Schwermetalles zu bewerkstelligen gedachte:

1. die Fluorierung,
2. die Chlorierung [Verfahren CHLORINEX] und
3. die direkte Auflösung in Salpetersäure [Verfahren GRIND-LEACH].

Die ersten beiden Verfahren sind im bisher benutzten Sinne keine reinen HEAD-END-Verfahren mehr, da durch sie bereits zusätzlich ein Großteil der Spaltprodukte mit abgetrennt werden sollte. Die Grundidee der Fluorierung und Chlorierung bestand darin, selektiv die Spalt- bzw. auch Brutstoffe zu verflüchtigen. Im Rückstand verbleiben der gesamte Kohlenstoff (Graphit) und die Hauptmenge der Spaltprodukte. Dies ist eine auf den ersten Blick bestechende Idee. Wenn man aber berücksichtigt, daß auf diese Weise riesige Mengen an hochradioaktivem Abfall entstehen - Graphit und Spaltprodukte fallen hierbei als Gemisch an -, dann schrumpfen die theoretisch vorhandenen Vorzüge beträchtlich.

Das Trennverfahren des HerauslöSENS der Schwermetalle aus dem Mahlgut sollte analog zur Grundidee der Aufarbeitung von LWR-Brennelementen verlaufen. Für die anschließenden Trennungen in die drei Fraktionen: Spaltprodukte, Brut- und Spaltstoff, war das im Prinzip bekannte Extraktionsverfahren mit Tributylphosphat (THOREX-Prozeß) vorgesehen.

Alle drei Trennverfahren benötigen eine Vorbehandlung, sie wird als Feinmahlen der Brennelemente bezeichnet.

### 2.2.1.1 Feinmahlen der Brennelemente

Unter mechanischem Feinmahlen der Brennelemente ist ein Desintegrationsschritt zu verstehen, bei dem man gezielt maschinelle Zerkleinerungsvorgänge anwendet, durch die Schwermetallpartikel und -kerne quantitativ aufgeschlossen werden. Die mittlere Korngröße des Mahlproduktes liegt unter derjenigen der Brennstoffkerne.

Das mechanische Mahlen ist ein nahezu problemloser Verfahrensschritt. Eine Maßstabsvergrößerung bereitet keine ernsthaften Schwierigkeiten.

Allerdings macht die weitgehende Zerstörung der Brenn- und Brutstoffpartikeln bzw. -kerne eine Verarbeitung von Feed- und Breedmaterial unmöglich, d.h., für ein solches Brennelementkonzept ist diese Methode nicht anwendbar. Sieben und Windsichten erbringen keine brauchbaren Trennergebnisse. Methoden, die sich flüssiger Hilfsmedien zur Trennung bedienen (Flotieren, Sedimentieren) werden durch die erschwerte Abtrennung des verhältnismäßig großen Feinkornanteils des Mahlproduktes aus der Flüssigkeit erheblich kompliziert.

Übrig bleiben als brauchbare Trennmethode nach dem Feinmahlen entweder das selektive Herauslösen des Schwermetalls (sog. Grind-Leach-Verfahren) oder die chemische Umsetzung des gesamten Graphits, vorzugsweise Verbrennen, wobei eine Schwermetall-Oxidasche zurückbleibt. Will man letzteres tun, so empfiehlt es sich allerdings, auf eine Feinmahlung zu verzichten. Man ist hierbei vielmehr bestrebt, die Brennstoffpartikeln beim Mahlvorgang nicht zu beschädigen, denn intakte Partikeln verhalten sich beim anschließenden Verbrennungsprozeß günstiger als weitgehend zerbrochene.

Als mögliche Zerkleinerungsverfahren wurden für das GRIND-LEACH-Verfahren Hammermühle, Walzenmühle und Kugelmühle untersucht.

Das Mahlen der Brennelemente in einer Kugelmühle wurde wegen des nur erreichbaren, geringen Zerkleinerungs(wirkungs)grades und wegen der diskontinuierlichen Arbeitsweise frühzeitig aufgegeben [1,13]. Intensiver untersucht sind die Zerkleinerungsmöglichkeiten unter Einsatz von Hammermühle und Walzenmühle [1].



Eine Kombination von beiden Verfahren ist in der Lage, die den gewünschten Partikelbruch sichernde Mahlgutfeinheit herzustellen.

Die besten Erfolge hinsichtlich Durchsatz, Mahlgutqualität und Verschleißbeständigkeit erbrachte eine speziell ausgestattete Walzenmühle, bei der das Mahlgut drei untereinanderliegende Walzenpaare mit immer enger werdenden Spalten passiert. Allgemein ist bei Walzenmühlen wegen des geringen Reibungskoeffizienten zwischen Graphit und gehärtetem Stahl der einzustellende Einzugs- winkel stets kleiner als der gewöhnlich für andere Mahlprodukte angewandte.

Der hohe Feinstaubanteil, der bei einer Feinmahlung entsteht, verursacht in dem sich anschließenden Auslaugungsschritt mit konzentrierter Salpetersäure zwei Nachteile: Einmal lösen sich geringe Mengen Graphit in  $\text{HNO}_3$  auf und bilden Huminsäuren, was in der nachfolgenden Solventextraktion zu erheblichen Betriebsstörungen führen kann und zum zweiten treten konventionell prozeßtechnische Hindernisse auf, wie z.B. Verstopfen der Filter durch kolloidalen Kohlenstoff. Schließlich bedingen die Adsorptivkräfte der vorhandenen großen Graphitoberflächen merkliche Uranverluste. Nicht unerwähnt bleiben darf die aufwendige radioaktive Abfallbehandlung der anfallenden Graphitschlamm-Mengen.

Die Mahlung kugelförmiger Brennelemente für das CHLORINEX-Verfahren erfolgte quasi-kontinuierlich in einer aus Hammermühle zur Grobzerkleinerung und einer Schlagscheibenmühle zur Feinmahlung bestehenden Anlage mit Umluftführung. Diese hält wegen ihrer Sichtwirkung den Feinstgutanteil ( $< 50 \mu\text{m}$ ) so klein wie möglich. Abb. 8 zeigt eine schematische Darstellung der Mahlanlage. Bei Hammermühlenbetrieb steht die Schlagscheibenmühle still. Die gesamte Umluft strömt dabei durch die Hammermühle, wodurch eine vorübergehende Bunkerung des groberen ( $> 0,25 \text{ mm}$ ) Hammermühlen-Gutes erreicht wird, während das entsprechende Feingut ( $< 0,25 \text{ mm}$ ) direkt mit dem Umluftstrom über ein Hochleistungszyklon mit aufgesetzten Filterkerzen abgeschieden wird (Sichtwirkung). Bei Weitermahlung des Hammermühlen-Grobgutes in der Schlagscheibenmühle wird der gesamte Umluftstrom in den HM-Bunker geleitet und dient lediglich als Transportmedium.

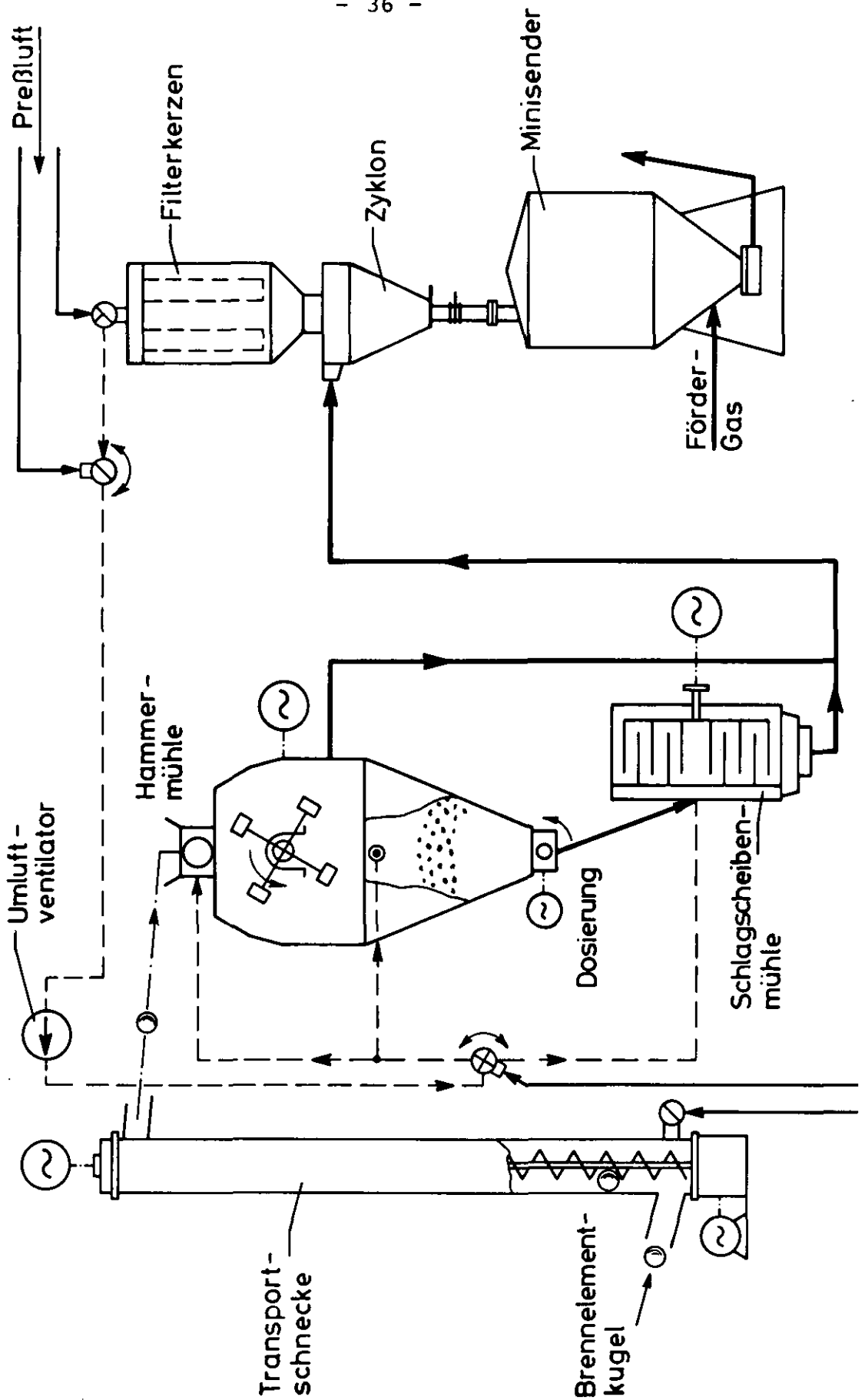


Abb. 8: Schematische Darstellung der Mahlanlage [45]

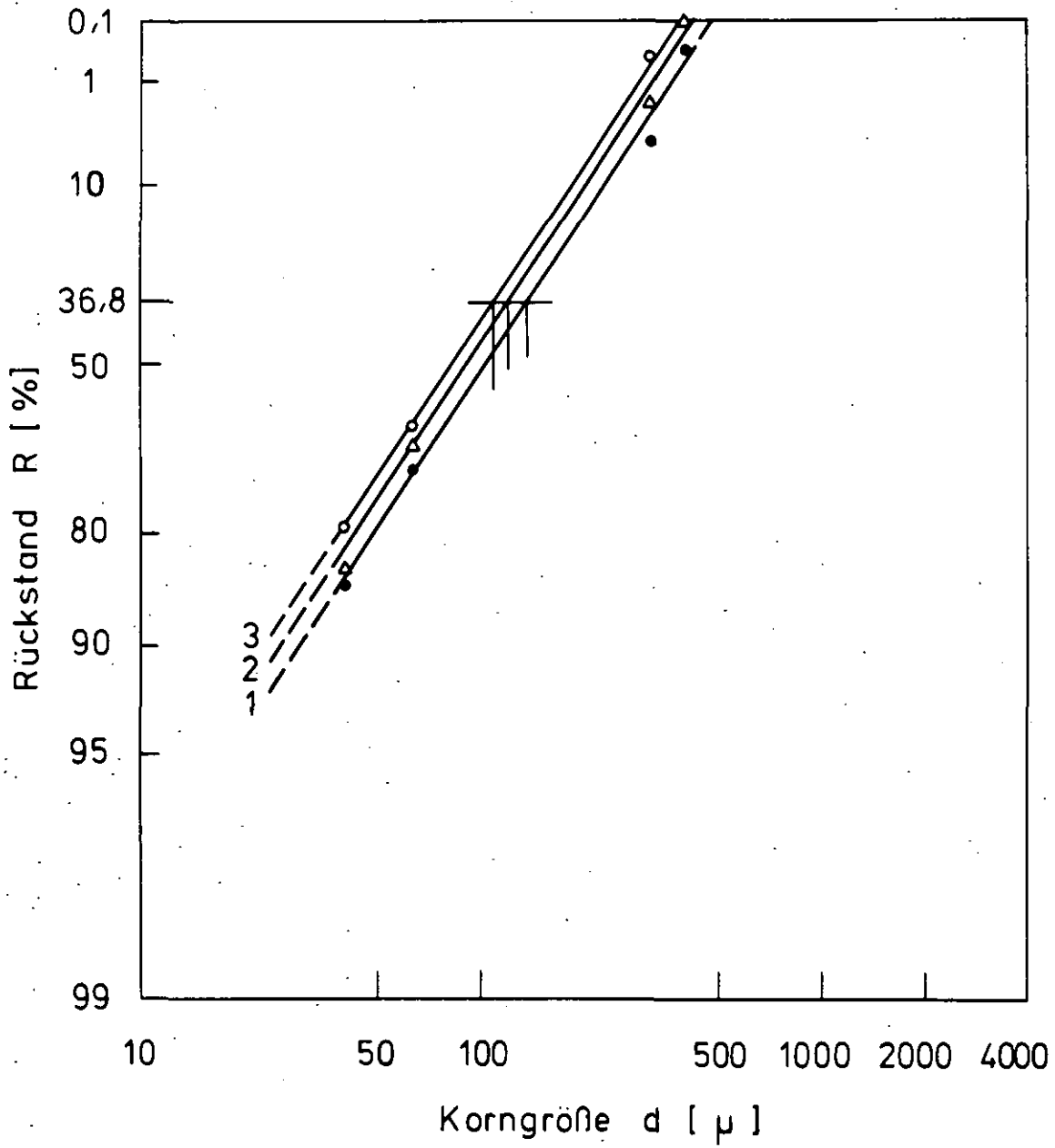


Abb. 9: Darstellung des Gesamt-Mahlgutes aus Hammermühle und Schlagscheibenmühle [45]

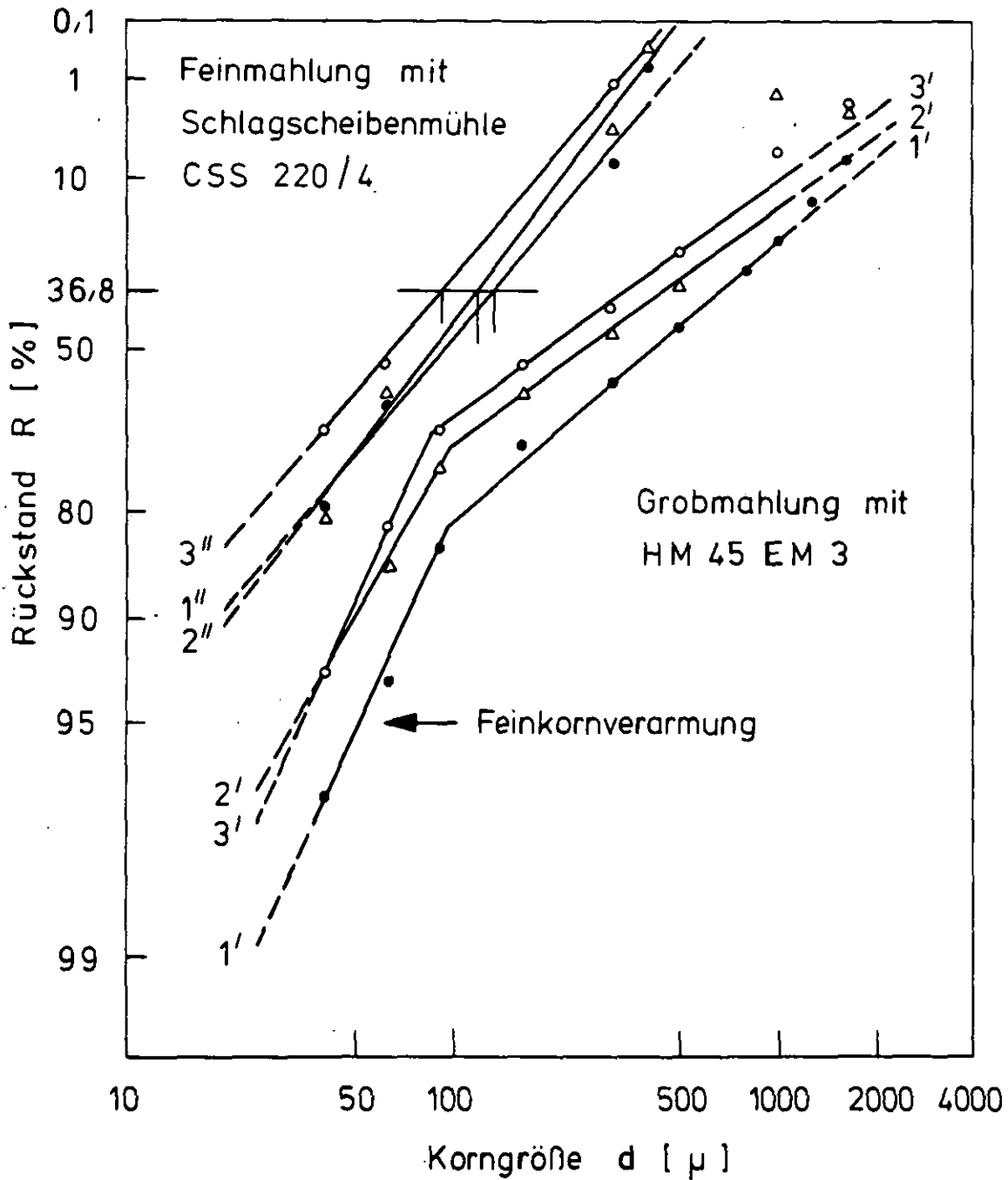


Abb. 10: Darstellung der Mahlergebnisse mit der Hammermühle und der Schlagscheibenmühle [45]

Die Abbildungen 9 und 10 zeigen die erzielte Wirkung des Umluftstromes auf das Mahlgutergebnis durch die praktizierte quasi-kontinuierliche Betriebsweise der beiden Mahlaggregate. Eine Analyse des Mahlgutes ergab eine Anreicherung der Schwermetallteilchen im Feinstbereich.

Literatur: [1,13].

#### 2.2.1.2 Umsetzen des Schwermetalles

##### 2.2.1.2.1 Fluorierung

Uranhaltige Kernbrennstoffe können durch Fluoridverflüchtigung des Urans aufgearbeitet werden. Hierzu benutzt man elementares Fluor oder Halogenfluoride. Bei den zur Reaktion notwendigen hohen Temperaturen ( $400 - 550^{\circ}\text{C}$ ) treten nur äußerst schwierig beherrschbare Werkstoffprobleme durch Korrosion auf. Zur Fluorierung des Urans wurde eine Fülle von Versuchen durchgeführt [10,20,4]. Dieses Verfahren scheidet für die HEAD-END-Behandlung aus. Als Gründe sind anzugeben:

1. Fluor bildet nur mit Uran und nicht mit Thorium flüchtige Fluoride.
2. Fluor reagiert bei den nötigen Prozeßtemperaturen mit Graphit zu Kohlenstofffluoriden, deren chemisches Verhalten Sicherheitsprobleme aufwirft.
3. Das aus Thorium gebrütete U-233 läßt sich nur unzureichend aus der Thoriummatrix durch ein Fluoridverfahren abtrennen [17], d. h. die Uranausbeuten sind schlecht.
4. Die erforderliche weitere Reinigung des Urans gelingt nur auf naßchemischem, extraktivem Wege.

Literatur: [10,20,15].

##### 2.2.1.2.2 Chlorierung

Chlor bietet im Gegensatz zu Fluor eine Möglichkeit, sowohl Uran als auch Thorium abzutrennen. Es bildet mit beiden Schwermetallen bei Temperaturen über  $800^{\circ}\text{C}$  flüchtige Chloride,

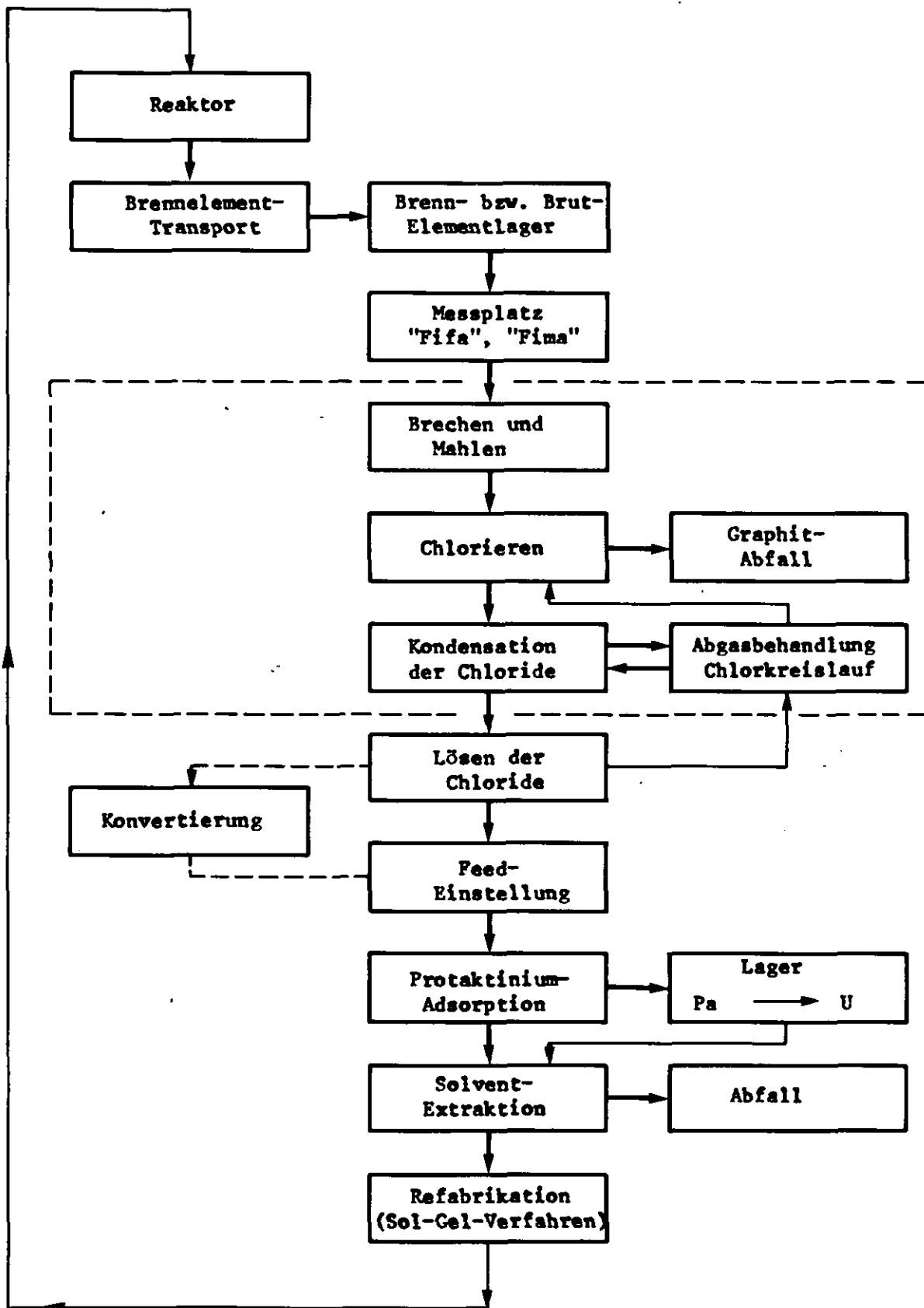


Abb. 11: Aufarbeitung thoriumhaltiger Kernbrennstoffe nach dem CHLORINEX-Verfahren [45]

welche anschließend voneinander getrennt werden können.

So wurde ein Gesamt-Prozeß vorgeschlagen, der diese Eigenschaft ausnutzt. Er läßt sich folgendermaßen beschreiben:

Im Anschluß an ein mechanisches Feinmahlen wird das Mahlgut in einem Reaktor bei etwa  $1000^{\circ}\text{C}$  chloriert. Die dabei verflüchtigten Thorium- und Uranchloride werden aus der Gasphase abgeschieden und in konzentrierter Form gewonnen [44]. In einem weiteren Schritt werden die Chloride in Nitrate konvertiert und in einer Solventextraktion mit Hilfe eines organischen Lösungsmittels abgeschieden. Ebenso ist auch eine direkte Extraktion mit Aminen aus salzsaurer Lösung möglich. Als besonders vorteilhaft erweist sich dieses Verfahren bei der Verarbeitung SiC-beschichteter Teilchen, da in diesem Falle keine weiteren vorbereitenden Verfahrensschritte notwendig sind.

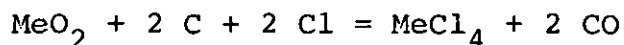
Die Entwicklungsarbeiten zum HEAD-END-Verfahren sind relativ weit gediehen, eine Technikumsanlage für den kalten Betrieb hat die grundsätzliche Durchführbarkeit des skizzierten Fließschemas erwiesen. Eine bei der KFA-Jülich konzipierte Heißzellenanlage wurde jedoch nicht mehr gebaut [44,45].

Der vom ICT der KFA entwickelte Verfahrensablauf zur Hochtemperaturchlorierung von Brennelementen ist in Abb. 11 dargestellt. Er ist unter dem Namen CHLORINEX bekannt. Das Fließschema zeigt das vollständige HEAD-END-Verfahren, in dem der interessierende Teil durch Umrahmung hervorgehoben wurde.

Die Grobzerkleinerung der kugelförmigen Brennelemente erfolgt in einer Hammermühle, in einer nachgeschalteten Schlagscheibenmühle wird das Gut feingemahlen. Durch die Feinmahlung ( $< 0,4\text{ mm}$ ) will man sicherstellen, daß die Beschichtungen der Partikel aufgebrochen werden und zudem eine Oberflächenvergrößerung erzielen, die eine höhere Schwermetallumsatzrate während des Chlorierungsvorganges verspricht.

Zahlreiche Autoren [45,46,47,48,49,50,51,52,53,54,83] haben grundlegende Untersuchungen zur Schwermetallchlorierung durchgeführt, die bei dem entwickelten CHLORINEX-Verfahren berücksichtigt wurden. Die Umsetzung der thoriumhaltigen Kernbrennstoffe geschieht in reiner Chloratmosphäre bei Temperaturen von ca.  $1000^{\circ}\text{C}$ . Für die Chlorierung der reinen Oxide läßt sich unter Annahme, daß überwiegend die entsprechenden Tetra-

chloride gebildet werden, folgende Reaktionsgleichung formulieren:



Bei einer Temperatur von 1000°C sind die Tetrachloride von Uran und Thorium gasförmig [45] und müssen in einem nachgeschalteten Desublimator verfestigt werden. In diesem Desublimationsgefäß sollte eine möglichst niedrige Temperatur eingestellt sein, damit die Umsetzung hinreichend langsam abläuft und nur ein unwesentlicher Uranverlust durch leichtflüchtige höherwertige Uranchloride erfolgt, deren Bildung bei fallender Temperatur und steigendem Dampfdruck begünstigt wird.

Von einer anfänglich angestrebten Chlorierung im Wirbelbett wurde später Abstand genommen, und man entschied sich für die Entwicklung eines kontinuierlich betriebenen Schachtofens. Der eigentliche Reaktor bestand aus einem Graphitrohr, das mit Hilfe von Widerstandsheizungen auf einer mittleren Temperatur zwischen 1100 und 1150°C gehalten wurde. Das Graphitrohr war von einem gasdichten Quarzrohr mit seitlichem Ansatz umgeben. An diesem Ansatz wurde der Desublimator, ebenfalls aus Quarzglas, angeschmolzen.

Nach einem Probetrieb von 300 Stunden mit Graphit wurden nacheinander in 300 weiteren Stunden 4,60 kg Oxid-Partikeln (Th:U = 10:1); 0,94 kg Fissiumoxid-Partikeln und 1,60 kg Carbidpartikeln gemischt, jeweils mit Graphitpulver im Verhältnis Schwermetall: Graphit = 5:95, chloriert. Die Ausbeuten an Uran lagen bei 99 % und besser.

Daß das CHLORINEX-Verfahren letzten Endes doch nicht zu einem großtechnischen Einsatz weiterentwickelt wurde, hat mehrere Gründe: Es wurde parallel zum sog. Burn-Leach-Verfahren entwickelt und wies gegenüber diesem einen erheblichen Entwicklungs-rückstand auf. Die Chloridionen, die in den auf das HEAD-END folgenden Solventextraktionsschritt verschleppt werden, führen zu starken Korrosionserscheinungen.

Weitere Nachteile dieses Verfahrens sind:

- neben Brennstoff werden größere Mengen an Spaltprodukten



mitverflüchtigt, damit wird ein weiterer Trennschritt nötig;

- technische Probleme im Chlorierungsreaktor durch die Korrosivität der Chlor-Ionen;
- Verkrustungsneigung im Desublimator mit der daraus resultierenden Verstopfungsgefahr;
- konstruktive Schwierigkeiten wegen der starken, unterschiedlichen Längendehnung einzelner Apparateteile im Chlorierungsschritt.

Die Weiterentwicklung des Verfahrens wurde Anfang 1970 zugunsten des BURN-LEACH-Verfahrens aufgegeben. In den Abschlußberichten [u.a. 45] wurde der technologische Vorsprung des BURN-LEACH-Verfahrens und das Abfallproblem angegeben. Man ging davon aus, daß bei Verbrennungsverfahren das Abgas, nach entsprechender Reinigung, an die Atmosphäre abgegeben werden kann, während beim CHLORINEX-Prozeß große Mengen an mittelradioaktivem, evtl. nach Zusatzbehandlung schwachradioaktivem Abfall, endgelagert werden müßten. Dies wäre aus heutiger Sicht kein Grund für eine Entscheidung gegen das CHLORINEX-Verfahren (siehe Kap. 4).

Die anfangs aufgezählten Gegenargumente wurden nie klar herausgestellt, die technologischen Probleme einerseits, die Korrosivität des Chlors und der ungünstige Einfluß des Chlors auf den Solventextraktionsschritt andererseits sind äußerst nachteilig. So kann auch heute dem damals getroffenen Entschluß, das CHLORINEX-Verfahren aufzugeben, zugestimmt werden.

Literatur: (Übersicht mit weiteren Literaturangaben) [45,20-26].

Weiterführende Literatur: [17,44,46-54] ,

Abgasreinigung für CHLORINEX: [83].

#### 2.2.1.2.3 Direkte Auflösung in Salpetersäure

Diese Möglichkeit wurde zu Beginn der Entwicklung von HEAD-END-Verfahren mit großem Optimismus untersucht. Vor allem

in den USA sind eine Fülle von Untersuchungen hierzu durchgeführt worden [1,17]. Das Verfahren ist unter dem Namen GRIND-LEACH bekannt geworden.

Bei der Entwicklung des Verfahrens wurden - wie üblich - zunächst nur Versuche mit unbestrahltem Material durchgeführt. Die erzielten Erfolge ließen die berechnete Aussicht auf einen möglichen technischen Großeinsatz zu. Man hatte den Brennstoff 5 Stunden in kochender Salpetersäure (13-16 M) gelöst, den Rückstand mit Wasser ausgewaschen und somit 99,8 % bzw. 99,5 % des eingesetzten Urans bzw. Thoriums zurückgewonnen [1,55].

Würde der Brennstoff zweimal 5 Stunden mit siedender Salpetersäure behandelt, ließen sich sogar 99,9 % des Schwermetalls zurückgewinnen.

Beim Einsatz von bestrahltem Brennstoff zeigte sich aber, daß die in kalten Laborversuchen erzielten hohen Uranausbeuten nicht mehr erreichbar waren. In abgebrannten Elementen sind infolge thermischer Diffusion und Kernrückstoßeffekten merkliche Schwermetallmengen dem Zugriff wässriger Reagenzien entzogen, was zu unannehmbar schlechten Ausbeuten führt. Außerdem wird durch den Einsatz von Salpetersäure als Lösungsmittel eine oberflächliche Oxidation des Graphits verursacht, bei der u.a. Polycarbonsäuren entstehen, deren emulgierende Wirkung die Extraktion empfindlich stört. Dies kann nur verhindert werden, wenn diese Verbindungen vor der Extraktion zerstört werden. Ein zufriedenstellendes Verfahren ist dazu nicht bekannt [1,5]. Dies und die Tatsache, daß die Konzentration an Spaltprodukten in dem verbleibenden Graphitschlamm so hoch ist, daß er in die Kategorie "hochaktiver Waste" fällt [14], machen den GRIND-LEACH-Prozeß unbrauchbar [5].

Literatur: [1,17,5,55].

### 2.2.2 Chemische Abtrennung durch Umsetzen des Graphits

Theoretisch bieten sich mehrere Möglichkeiten an. Den Verfahren liegt eine Umwandlung des festen Graphits in einen gasförmigen oder flüssigen Zustand zugrunde. Aus energetischen Gründen

haben nur Verfahren Bedeutung, bei denen eine Umwandlung zu  $\text{CO}$ ,  $\text{CO}_2$  oder Kohlenwasserstoffen vorgenommen wird. Zur Umwandlung kommen trivialerweise nur Verbrennungs- (BURN-LEACH, GRIND-BURN-LEACH)- und Vergasungsprozesse in Frage. Es bestehen die Möglichkeiten, ganze oder gebrochene Brennelemente zu verarbeiten. Für die Reaktionsgeschwindigkeit ist das Oberflächenangebot des umzusetzenden Materials (hier Graphit) ausschlaggebend, so kann durch eine Zerkleinerung (engl. grinding) der Brennelemente der Durchsatz erhöht werden. Eine Zerkleinerung hat für die zu beschreibenden Verfahren Vorzüge, wenn es gewährleisten kann, daß die beschichteten Partikeln dabei weitgehend unzerstört bleiben.

Zerkleinerungsprozesse, die dies gewährleisten, wurden bevorzugt für die chemischen Trennprozesse untersucht. Sie sollen im folgenden unter dem Begriff mechanisch kontrollierte Zerkleinerung dargestellt werden.

#### 2.2.2.1 Mechanisch kontrollierte Zerkleinerung der Brennelemente

Unter mechanisch kontrollierter Zerkleinerung der Brennelemente sind Verfahren zu verstehen, bei denen die coated particles (incl. SiC-Schicht) nicht zerstört werden. Das ist eine idealisierte Forderung, die leider kaum eingehalten werden kann.

Die in verschiedenen Laboratorien experimentell ermittelten Bruchraten sind äußerst schwierig miteinander zu vergleichen. Durch die Komplexität der zu den Versuchen eingesetzten unterschiedlichen Partikelsorten und Partikelbeschichtungen und den daraus resultierenden unterschiedlichen Bruchratendefinitionen, wird ein Vergleich sehr erschwert. Obgleich der Mahlvorgang an unbestrahltem Material im 1:1 Maßstab erprobt worden ist, besteht in der Beurteilung des jeweiligen Verfahrens eine enorme Unsicherheit bezüglich des Verhaltens bestrahlten Materials. Eine Optimierung der Brechstufe zu minimalem Bruch kann nur in vergleichenden Heißzellen-Versuchen durchgeführt werden.

Besondere Bedeutung hat die Forderung nach Unversehrtheit der Brenn- und Brutstoffpartikeln beim Einsatz eines Wirbelschicht-

Verbrennungsverfahren. Während es bei den Mischoxidpartikeln die durch Partikelbruch (auch schon durch SiC-Schalenbruch) stark erhöhte Abgaskontamination mit Kr-85, H-3, Ru-106, Cs 137, Ce 144 u.a. zu vermeiden gilt, wirkt sie sich bei Brennstoffkernen, die aus  $\text{UO}_2$  oder  $\text{UC}_2$  bestehen, noch erheblich nachteiliger aus [39].

Bei der Oxidation der infolge einer beschädigten oder überhaupt nicht mehr vorhandenen SiC-Schicht ablaufenden Umwandlung der  $\text{UO}_2$ - bzw.  $\text{UC}_2$ -Kerne in  $\text{U}_3\text{O}_8$  entsteht ein sehr feines Pulver, aus dem die Spaltprodukte viel stärker in die Gasphase verdampfen als dies bei den intakten Brennstoffkernen der Fall ist.

Besonders bei diesen Kernmaterialien ist nicht der Kernbruch, sondern schon der SiC-Hüllenbruch, der naturgemäß größer ist, relevant für die Mahlprozeßbeurteilung.

Für die Verbrennung des Graphits in der Wirbelschicht ist die Größenverteilung, repräsentiert durch den arithmetischen mittleren Korndurchmesser des Mahlgutes, ebenfalls von Bedeutung. Anströmungsgeschwindigkeit, chemische Reaktionsgeschwindigkeit, spezifische Oberfläche und andere Werte stehen im qualitativen Zusammenhang. Leider steigt auch mit wachsendem Zerkleinerungsgrad der Partikelbruch, so daß sich einmal aus der Partikelgröße eine untere und zum anderen aus wirtschaftlichen Gründen eine obere Grenze für die mittlere Korngröße des Mahlgutes ergibt. In [39] wird die mittlere max. Korngröße mit 2,2 ... 4,5 mm angegeben.

#### 2.2.2.1.1 Zerkleinerung von Kugel-Brennelementen

##### Einsatzmöglichkeiten der Hammermühle

Die Hammermühle arbeitet nach dem Prinzip der Schlag- und Prallzerkleinerung. Sie besteht aus einem Rotor mit radial angeordneten beweglichen Hämmern. Ein Lochblech umschließt den Arbeitsraum. Die Haupteinflußfaktoren auf die Zerkleinerungsarbeit sind Siebeinsatzgeometrie und Umfangsgeschwindigkeit des Rotors [56]. Allgemein kann festgehalten werden, daß mit abnehmendem Sieblochdurchmesser und mit zunehmender Umlaufge-

schwindigkeit die Feinheit des Mahlgutes bei gleichfalls steigendem Energiebedarf zunimmt, wobei besonders im Feinbruch die Teilchengrößenverteilung der RRSB-Verteilung folgt [57].

Untersuchungen mit einer Hammermühle, Fabrikat HM 2, der Fa. Siebtechnik, bestätigen diese grundsätzlichen Abhängigkeiten [39]. Abb. 12. zeigt charakteristische Werte mehrerer Mahlprodukte für verschiedene Siebeinsätze: Mit wachsender Schlitzbreite des eingesetzten Längsschlitzsiebes vergrößert sich die mittlere Korngröße, während sich der SM-Partikelbruch von 34 ... 26 % auf 1,2 % verringert. Die Bruchrate für das Mahlprodukt Nr. 2, bei dem ein Querschlitzsieb mit einer Schlitzbreite von 2,5 mm eingesetzt wurde, liegt trotz besserem Zerkleinerungsgrad niedriger als bei vergleichbarem Versuch mit dem Mahlprodukt Nr. 4. Deswegen wurden Querschlitzsiebe eingesetzt. Diese Tatsache kann durch das unterschiedliche Verhältnis von Lochfläche zur Gesamtfläche des Siebeinsatzes erklärt werden, welches bei den benutzten Querschlitzsieben deutlich größer ist.

Eigene Untersuchungen mit einer Hammermühle ergaben negative Ergebnisse. Als größter Siebeinsatz wurde dabei ein 4 mm-Querschlitzsieb verwandelt. Der SiC-Hüllenbruch betrug für 500  $\mu\text{m}$ -TRSIO-(U/Th) $\text{O}_2$ -Partikel über 70 %, während noch von den 200  $\mu\text{m}$ -TRISO-UC<sub>2</sub>-Feed-Partikel die Hälfte der SiC-Schicht defekt waren. Die mittlere Korngröße lag zwischen 800 und 900  $\mu\text{m}$ .

Ausgehend von diesen Werten und von der Tatsache, daß sie an unbestrahlten Brennelementen ermittelt wurden, muß man pessimistischerweise davon ausgehen, daß durch die Schlag- und Prallzerkleinerung in einer Hammermühle die TRSIO-SiC-Schicht bestrahlter Brennelemente fast quantitativ zerstört wird. Zumindest werden jedoch die Schwermetall-Partikelbruchwerte aus Abb. 12 erheblich überschritten (vermutlich handelt es sich bei diesen Zahlen um Kernbruchraten von Mischoxid-Partikeln).

Der Einsatz der Hammermühle ist nur für die Feinmahlung vorteilhaft. Die Hammermühle erlaubt bei relativ hohem Zerkleinerungsgrad einen hohen BE-Durchsatz.

Literatur: [39,56,57].

Mahlprodukt-Nr.	1	2	3	4	5
mittl. Kron- größe $d_{m,T}$	450	840	940	2200	2300
Schüttdichte $Q_s$ [g/cm <sup>3</sup> ]	0,82	0,93	1,01	0,87	0,96
geschätzte geom. spez. Oberfläche $F_v$ [cm <sup>2</sup> /cm <sup>3</sup> ]	$0,61 \cdot 10^4$	$2,3 \cdot 10^3$	$8,7 \cdot 10^2$	$5,8 \cdot 10^2$	$4,1 \cdot 10^2$
Korngrößenver- wandlungsfunktion	RRS	RRS	RRS	-	RRS
Feinanteil 50	17	9	6,5	7	4,5
SM-Partikel bruch [%]	26 ... 34	6,7	7,4	2,6	1,2
Mühlen- und Siebart H $\hat{=}$ Hammermühle B $\hat{=}$ Backenbrecher	H	H	H	B	B
l $\hat{=}$ Längsschlitz- sieb q $\hat{=}$ Querschlitz- sieb	l	q	l	-	l
Schlitzbreite [mm]	1,5	2,5	3,0	2,0	3,5

Abb. 12: Daten der untersuchten Mahlprodukte des BE-Graphits  
[39]

### Einsatzmöglichkeiten des Backenbrechers

(in Kombination mit einer Walzenmühle)

Die Zerkleinerung im Backenbrecher erfolgt vor allem durch Druckbeanspruchung zwischen der festen Brechbacke, die im Brechergehäuse sitzt, und der beweglichen Brechbacke. Gewöhnlich sind die Brechflächen mit Brechzähnen versehen, wobei der Einzugs-  
winkel der Backen den Reibungswinkel zwischen dem zu zerkleinern-  
den Gut und den Brechbacken nicht überschreiten darf. Gewöhnlich  
hat sich ein Winkel zwischen  $16^{\circ}$  und  $22^{\circ}$  bewährt [58]. Wegen des  
geringen Reibungskoeffizienten für Graphit werden für Graphit-  
Kugeln diese konventionellen Werte unterschritten. Es werden  
Einzugswinkel zwischen  $13,5^{\circ}$  und  $15^{\circ}$  benötigt.

Backenbrecher bieten den konstruktiven Vorteil, daß zu Über-  
kornzerkleinerung unter dem Backenbrecherausstritt eine Walzen-  
mühle als weitere Zerkleinerungsstufe plaziert werden kann.  
Solche Kombinationen wurden erfolgreich getestet und liefern  
gute Ergebnisse. In [10] wird berichtet, daß das Mahlgut zu  
87 % aus intakten Kernen, zu 5 % aus gebrochenen Kernen und  
zu 8 % aus unversehrten Teilchen besteht.

Eine solche Kombination aus Backenbrecher und Walzenmühle ist  
auch das in den USA entwickelte UNIFRAME-Zerkleinerungssystem,  
bei dem zwei Backenbrecher und eine Walzenmühle übereinander  
angeordnet sind. Konzipiert wurde diese Maschine zur Zerklei-  
nerung der US-Blockbrennelemente, jedoch wurde sie 1980 auch  
erfolgreich im Rahmen der JFPD Preliminary Tests für HTR-Kugel-  
brennelemente getestet [28], [59].

Nachuntersuchungen im ICT [60] ergaben eine tolerierbare Über-  
einstimmung mit den in [28] dokumentierten Werten über das Par-  
tikelbruchverhalten von  $\text{TRISO}-(\text{U/Th})\text{O}_2$ -Partikeln, wobei unter  
Partikelbruch der Bruch der SiC-Schalen verstanden wird.

Durch eine Überkornzerkleinerung der abgesiebten Grobfraction  
wird der Schalenbruch von 14 % bei  $d_m = 3150 \mu\text{m}$  auf 15 % bei  
 $d_m = 2350 \mu\text{m}$  unerheblich angehoben.

Eigene Versuche mit einem Laborbackenbrecher bestätigten den  
Backenbrecher als relativ partikelschonende Zerkleinerungs-  
maschine: So wurden bei einer mittleren Korngröße von  $1200 \mu\text{m}$

23 % der SiC-Schalen gebrochen. Alle diese Zahlen sind aus Bruchvorgängen mit unbestrahlten Brennelementen ermittelt. Die wirklichen Werte sind wahrscheinlich erheblich höher.

Bezüglich einer Maßstabsvergrößerung von einer Labormaschine auf einen 1:1-Backenbrecher sind dagegen keine Schwierigkeiten zu erwarten. In einem Kurzzeitversuch wurde mit der UNIFRAME eine Durchsatzrate von 200 Kugelbrennelementen pro Minute demonstriert.

Auch weist der Backenbrecher eine für die Wirbelschichtverbrennung günstige Korngrößenverteilung des Mahlgutes auf. Ein geringerer Feinanteil bei gleichzeitig vermindertem Korngroben verhindert die Sedimentation größerer Graphitkörner und verringert den Feinstaubaustrag.

Literatur: [10,28,58,59]; Analysenvergleich GAC/ICT [60]

#### 2.2.2.1.2 Zerkleinerung von Blockbrennelementen

Zur mechanisch-kontrollierten Zerkleinerung von Block-Brennelementen wurde in der Bundesrepublik Deutschland eine Walzenfräsmaschine und in den USA die schon erwähnte UNIFRAME entwickelt.

##### UNIFRAME

Eine Beschreibung der UNIFRAME mit ausführlicher Literaturliste findet man in der Versuchsbeschreibung des sog. JFPD Preliminary Test [28,89,90].

Das Zerkleinern der Brennelemente erfolgt in einem dreistufigen System, bestehend aus zwei übereinander stehenden Backenbrechern, einer Doppelwalzenmühle sowie zusätzlich einer Überkornnachzerkleinerung - Sieb mit Einwalzenmühle -. Die Nachzerkleinerung soll eine Kornverteilung mit einem Maximalkorn von 4,75 mm sicherstellen, die sich in US-Versuchen für die Wirbelschichtverbrennung als brauchbar herausgestellt hatte.

Die Zerkleinerungsmaschinen sind auf einem speziellen Rahmen montiert, der die Standardgehäuse der beiden Backenbrecher und der Doppelwalzenmühle ersetzt. Sie sind so übereinander angeordnet, daß die Förderung durch Schwerkraft erfolgt, auf zu-



sätzliche Fördereinrichtungen verzichtet werden kann und sich das System weitgehend selbst entleert. Diese Anordnung erlaubt die vollständige Abkapselung der Brecheinrichtungen, eine geringe Vakuumhaltung mittels Ventilator und verhindert Staubaustritt in die Raumluft. Das System wird als Uniframe bezeichnet, weil alle Geräte in einem Rahmen angeordnet sind. Die komplett aufgebaute Uniframe zeigt Abb. 13, Details der Konstruktion können der angegebenen Literatur entnommen werden.

#### Walzenfräsmaschine

Abb. 14 zeigt eine Fotografie der Walzenfräsmaschine und Abb. 15 eine Prinzipskizze der Arbeitsweise dieser Maschine.

Die Zerkleinerung der Brennelementblöcke (1) erfolgt durch paarweise angeordnete, gegenläufige mit Hartmetallschneiden bestückten Fräswalzen. Infolge der unterschiedlichen Durchmesser der Werkzeuge resultiert aus dem im Gleichlauf fräsenden oberen Walzen eine Vorschubkraft in Arbeitsrichtung (4). Die Führung der Brennelemente erfolgt durch prismatische Schienen (5), die den Block zentrieren, und durch die Führungsrollen (2) und (3). Während die Rollen (3) in ihrer Position starr sind, können die gegenüberliegenden Rollen (2) wegen ihrer exzentrischen Anlenkung mittels Druckluftbetätigung

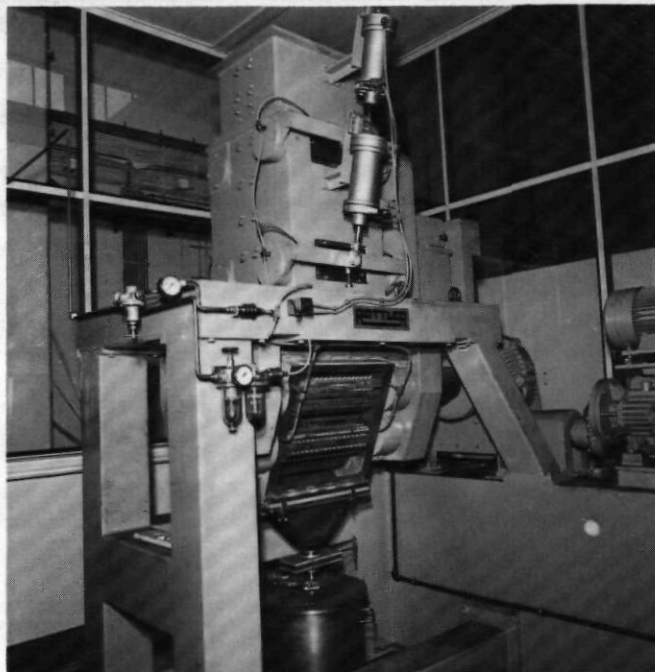


Abb. 14: Ansicht der Blockbrennelementwalzenfräsmaschine

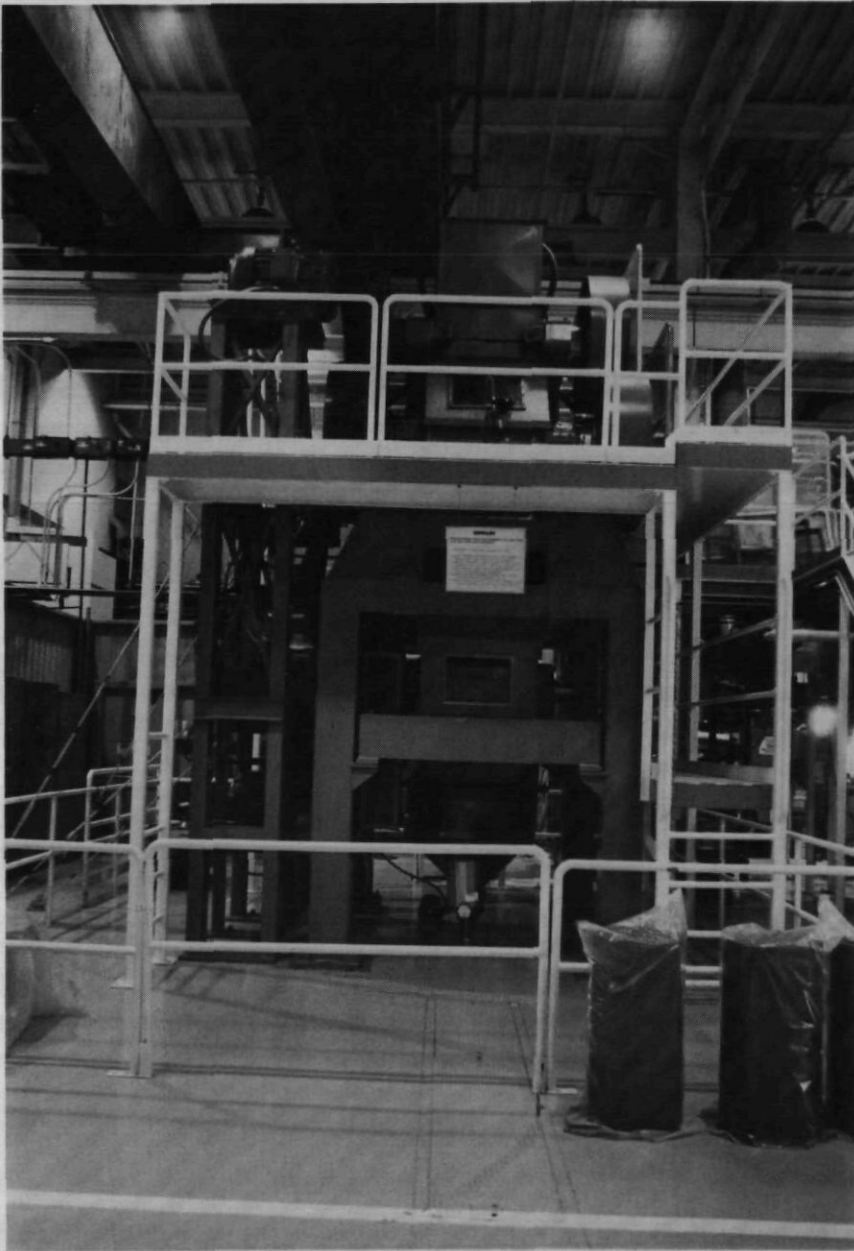


Abb. 13: Fotografie der UNIFRAME [28,89,90]  
(mit Genehmigung: der Firma  
General Atomic, San Diego USA)

einzelnen in Eingriff gebracht werden. Sie weisen eine pfeilförmige Profilierung auf und sind durch ein PIV-Getriebe und eine elektrisch betätigte Kupplung direkt mit dem Hauptantrieb gekoppelt, der seinerseits ein Regelgetriebe zur Leistungssteuerung besitzt, so daß mit ihrer Hilfe die Vorschubgeschwindigkeit stufenlos eingestellt werden kann.

Die Erfahrungen beim Betrieb der Fräse waren befriedigend, aufgetretene Schwierigkeiten sind auf den Prototypcharakter dieser Anlage zurückzuführen, Fehlerbeschreibung und Verbesserungsvorschläge sind in einem Kurzbericht [29] beschrieben.

Literatur: UNIFRAME [38,59,89,90] ,  
Walzenfräsmaschine: [29,82].

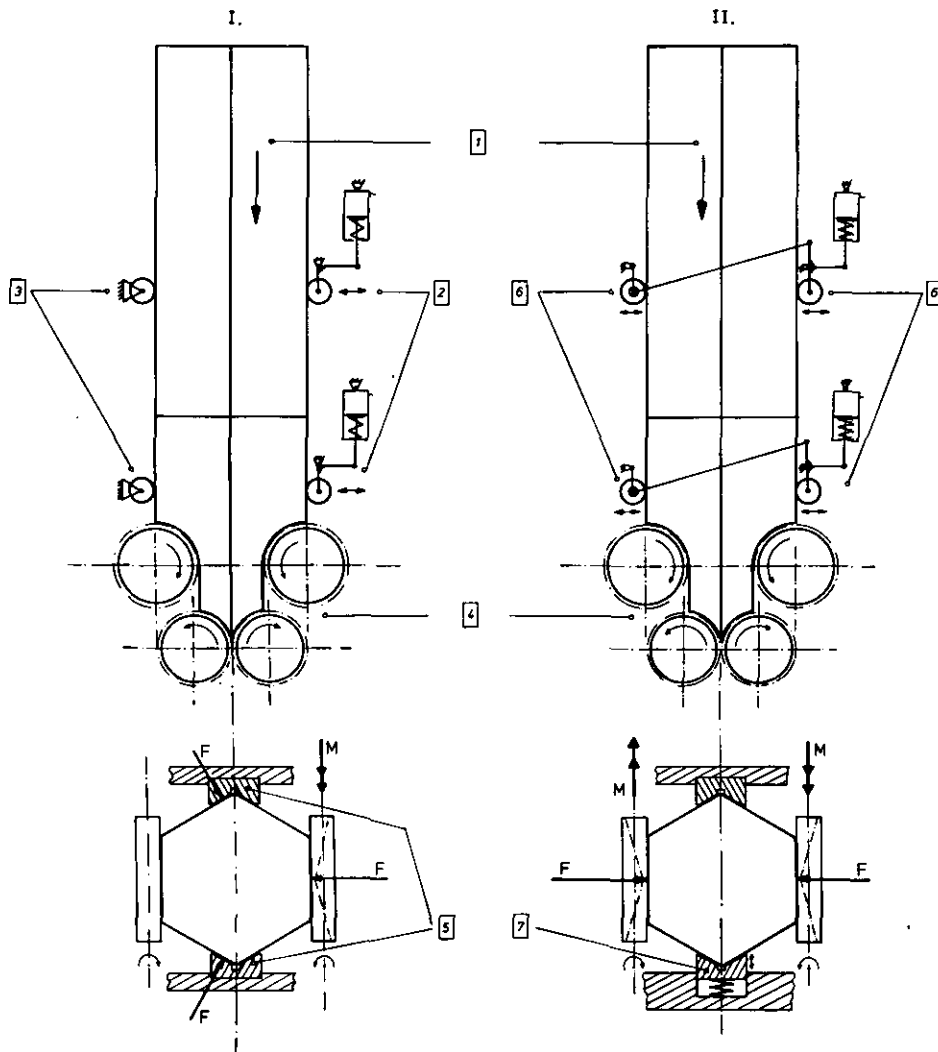


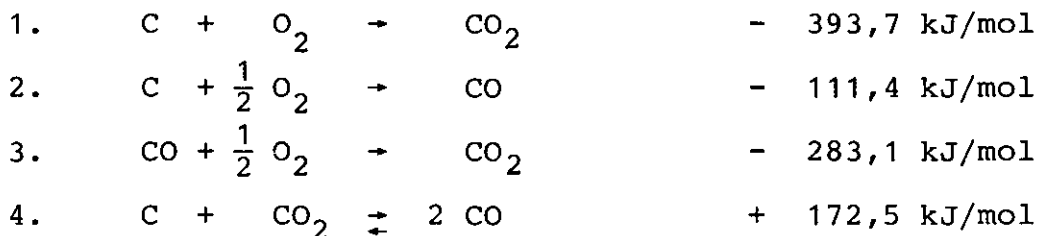
Abb. 15: Prinzipskizze der Blockbrennelementwalzenfräsmaschine

## 2.2.2.2 Umsetzung des Graphits

### 2.2.2.2.1 Umsetzung zu CO<sub>2</sub> (Verbrennen)

Als einzig brauchbares Verfahren ist hierzu die Verbrennung des Graphits anzusprechen. Es sei angemerkt, daß theoretisch auch andere Möglichkeiten angegeben sind, den Graphit zu CO<sub>2</sub> umzusetzen (z.B. Naßverbrennung unter Druck [1,10]); sie bieten keinen Vorteil gegenüber der Verbrennung, da sie technologisch wesentlich aufwendiger sind und zudem die gleiche Abgasbehandlung wie ein Verbrennungsprozeß benötigen.

Die Abtrennung des Kernbrennstoffes durch Verbrennung des Graphitanteiles liegt nahe, denn die Hauptreaktionen sind



Als Rückstand einer Verbrennung verbleiben die mit Spaltprodukten oder Spaltprodukt oxiden verunreinigten Kernbrennstoff-oxide. Die Vorzüge und auch die Problematik der Verbrennung als HEAD-END-Verfahren wurden schon frühzeitig erkannt.

Als besonderer Vorzug ist die einfache und bekannte Reaktionsführung und als Nachteil die nötige Abgasbehandlung zu nennen. Besonders wegen der Abgasbehandlung räumt man anfänglich anderen HEAD-END-Verfahren größere Chancen ein. Trotz dieser von vornherein erkannten Problematik begann man schon um 1960 mit der Untersuchung der Verbrennung als Trennverfahren; der Prozeß wurde BURN-LEACH genannt. Anfang 1960 wurden bereits in Oak Ridge (USA) Schachtofenversuche durchgeführt. Die Ergebnisberichte [15,16] wurden damals vertraulich behandelt. Eine kurze Veröffentlichung [17] gibt einen guten Überblick zum damaligen Stand:

Die unternommenen Versuche wurden zunächst in einem kleinen zylindrischen Schacht aus Edelstahl von 126 mm Durchmesser und ca. 1000 m Länge mit reinem Sauerstoff durchgeführt. Nach

ersten Mißerfolgen, die durch örtliche Überhitzung und die damit verbundene Schlackenbildung verursacht wurden, gelang es, durch Zumischen von 40 Vol. % Stickstoff die Verbrennung zu beherrschen, wobei das Gasgemisch in mehreren Zonen über der Schütthöhe eindosiert wurde. In der verhältnismäßig kleinen Apparatur wurden Durchsätze von 2 - 3 kg vorgebrochenen Graphits pro Stunde erreicht, ohne daß Schlackenbildung auftrat.

Aus der in der Literaturstelle angegebenen Wärmestromdichte von  $\{120 \text{ kW}\}/\text{cm}^2 \approx 100 \cdot 10^3 \text{ kcal/m}^2\text{h}$  kann man nach Maßangabe der Wandtemperatur von  $500^\circ\text{C}$  schließen, daß die Zentraltemperatur der Schüttung etwa  $1500^\circ\text{C}$  betragen haben muß.

Um den Durchsatz dieses Verbrennungsprinzips zu erhöhen, wurde ein als ein "Slab" ausgebildeter geometrisch sicherer Schacht mit den Abmessungen von etwa 60·600·400 mm gebaut. Im Jahre 1964 wurde dieses Projekt wegen der aufgetretenen Schwierigkeiten bei der Temperatursteuerung und der Sauerstoffausnutzung zugunsten des bereits im Brookhaven National Laboratory mit Erfolg erprobten Wirbelschichtverfahrens aufgegeben [18,27,115,133].

Um die Brennelemente in einem Wirbelschichtverfahren zu verbrennen, müssen sie erst zerkleinert werden (siehe Kap. 2.2.2.1), daher wurden diese Gesamtprozesse auch GRIND-BURN-LEACH-Verfahren genannt.

Die Entwicklung zur Wirbelschichtverbrennung als HEAD-END-Verfahren wurde in den USA, vor allem im Oak Ridge National Laboratory, ORNL, und bei der Firma General Atomic Company, GAC, San Diego, zielstrebig vorangetrieben. Dieses Verfahren gilt als die beste Lösung für die HEAD-END-Behandlung. Eine kalte Pilotanlage bei der GAC und Heiß-Zellen-Versuche im ORNL bestätigen diese Aussage. Zum Wirbelschichtverfahren wird in Kap. 5 noch detaillierter berichtet.

In der Bundesrepublik Deutschland verlief die Entwicklung zum BURN-LEACH-Prozeß ähnlich, allerdings mit zeitlicher Verzögerung. Die Forschungsarbeiten waren wegen der teilweisen Geheimhaltung von Versuchsergebnissen, zumindest anfänglich, nicht von in den USA gewonnenen Erkenntnissen beeinflusst.

Von 1967 an begann man sowohl im ICT der KFA-Jülich als auch

bei der Firma NUKEM, Hanau, sehr intensiv mit den Forschungsarbeiten zum BURN-LEACH-Prozeß. Alternativ wurde von der Firma NUKEM die Verbrennung von ganzen Kugeln im Schacht-Ofen und von der KFA-Jülich die Verbrennung von gemahlenen Kugeln im Wirbelschicht-Ofen, anfänglich mit Zusatz von Aluminium-Oxid, untersucht. Ziel der Studien war die Entwicklung eines Prozesses, in dem die Graphit-Elemente schnell und vollständig mit hoher Sauerstoffausnutzung und minimaler Entwicklung von CO verbrannt werden konnten. Bei der Verbrennung sollte möglichst die Bildung von hohen Bett-Temperaturen vermieden werden, da diese zu einer gesinterten und nur reaktionsarmen Asche führen. Durch ein gesintertes Verbrennungs-Produkt wird nicht nur die chemische Reaktivität (z.B. Auflösung) herabgesetzt, sondern es werden auch weitere Schritte nötig, z.B. eine zusätzliche chemische Behandlung, Überführen des Verbrennungsproduktes in andere Behälter, Installation eines speziellen Entstaubungssystems für die zusätzlichen Prozesse.

Wegen der deutlichen Vorzüge gegenüber dem Verbrennen ganzer Brennelemente im Schachtofen galt ab Beginn der 70er Jahre die Wirbelschichtverbrennung zerkleinerter Brennelemente als beste Lösung.

Anfänglich glaubte man, daß die Wirbelschichtverbrennung nur durch Zugabe von Inertstoffen wie  $\text{Al}_2\text{O}_3$  durchführbar ist. Die gleichzeitige Beschickung des Wirbelbettes mit Graphit, Schwermetallteilchen und  $\text{Al}_2\text{O}_3$  verlangt aber eine Arbeitsweise, bei der nach Abbrennen des Graphits das Schwermetall in stark verdünnter Form in Mischung mit einem großen Überschuß an  $\text{Al}_2\text{O}_3$  aus dem Wirbelschichtofen abgezogen wird. Anschließend muß der Schwermetallanteil durch Siebung oder Windsichtung vom Fließmittel  $\text{Al}_2\text{O}_3$  getrennt werden. Es ist weiterhin damit zu rechnen, daß ein Teil des Schwermetalls und der Spaltprodukte am  $\text{Al}_2\text{O}_3$  adsorptiv gebunden werden oder sich in fester Form auf ihm abscheiden.

Es erschien daher angebracht, das Verbrennungsverhalten des Graphits ohne Zusatz von  $\text{Al}_2\text{O}_3$  zu untersuchen. Da hierbei aber bei Beschickung mit reinem Sauerstoff lokale Überhitzungen kurz oberhalb des Anströmbodens auftreten, die zu Sinterung des

Schwermetallanteils und einer starken Erhöhung des CO-Anteils im Abgas führen, wurde eine teilweise Mischung des Brenngases mit CO<sub>2</sub> vorgesehen.

Es wurde die bis heute gültige Betriebsweise gefunden. Durch geeignete Wahl des O<sub>2</sub>/CO<sub>2</sub>-Verhältnisses erzielt man einen gleichmäßigen Abbrand und die von der anschließenden Abgasreinigung geforderten Spezifikationen besonders im Hinblick auf den CO-Gehalt. Ein weiterer Vorteil dieses Verfahrens ist darin zu sehen, daß bei einer Zumischung von CO<sub>2</sub> die Brennzone auf einen größeren Bereich der Betthöhe ausgedehnt wird. Eine Begrenzung liegt lediglich in der Bedingung, daß der Anteil an unverbrauchtem Sauerstoff nicht höher liegt als 50 Vol.-% des gebildeten CO, um eine vollständige Nachverbrennung am Katalysator in der Gasreinigungsanlage zu gewährleisten.

Als auch noch demonstriert werden konnte, daß die Reinigung des Verbrennungsabgases von Staub, Spaltprodukten und Edelgasen soweit möglich ist [97], daß nur noch CO<sub>2</sub> an die Atmosphäre abgegeben zu werden braucht, galt das GRIND-BURN-LEACH-Verfahren als die beste Lösung für das HEAD-END. Heiß-Zellen Versuche 1969 im ICT, im ORNL sowie mit mehreren großen "kalt" betriebenen Versuchsständen, (siehe Abb. 58,69,60,61,62,63,64,66), bestätigen diese Aussage.

Aufgrund der Anfang der 70er Jahre erzielten Erfolge bei der Entwicklung des Verbrennungs-HEAD-END's glaubte man an eine baldige Realisierung einer großtechnischen Prototyp-HEAD-END-Anlage.

Die Projekte JUPITER, VENUS und ARTHUR wurden initiiert (Kap. 5.5). Die Entwicklung verlief jedoch wesentlich langsamer als ursprünglich geplant.

Im Jahre 1969 begann man mit den Planungen zum Bau der JUPITER-Anlage [23], 1979 wurde ein kalter Probetrieb des HEAD-END's aufgenommen. Die Anlage wird zur Zeit umgerüstet, um im HEAD END auch LEU-beladene Brennelemente verarbeiten zu können.

Das Projekt VENUS wurde um 1973 aufgenommen, es wurden zahlreiche Studien und auch ein Großversuch an einem Wirbelschicht-

reaktor mit 300 mm Durchmesser (Abb. 58) durchgeführt. Mit einer Zusammenstellung von Planungsunterlagen [61,62,110] wurde das Projekt eingestellt.

Für das Projekt ARTHUR gab es nur Vorstudien [63].

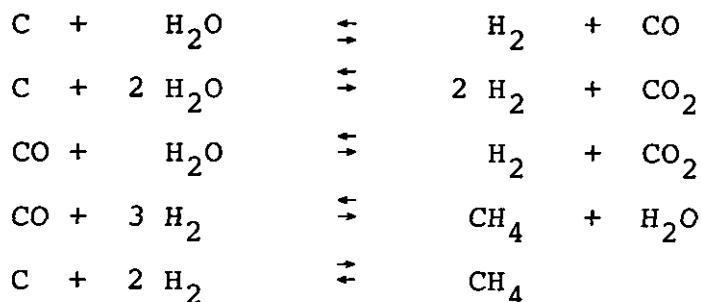
Im Jahre 1980 wurde das Forschungsprogramm zur HEAD-END-Entwicklung erneut umgestellt. Das Hauptaugenmerk soll nun auf die HEAD-END-Behandlung von LEU-beladenen Brennelementen gerichtet werden. Es wurden hierfür Arbeiten zu einem Heiß-Zellen-Versuch aufgenommen, in dem ca. 2500 AVR-Brennelemente mit BISO-beschichteten Brennstoffkernen verarbeitet werden sollen (AVR VI-Experiment) (Kap. 5.5.5).

Die Bemühungen, eine kalte HEAD-END-Prototypanlage doch noch zu errichten und zu betreiben, werden nun in einem anderen Rahmen als Langzeitvorhaben weiterverfolgt.

Zusammen mit der GAC (USA), der Firma NUKEM, Hanau, und dem ICT der KFA-Jülich wurde dieses Projekt in Angriff genommen. Näheres zu den Projekten ist dem Kap. 5.5 zu entnehmen.

#### 2.2.2.2.2 Umsetzung des Graphits zu Kohlenwasserstoffen und Kohlenwasserstoffgasgemischen

Neben der Verbrennung sind mehrere Vergasungs- und Verflüssigungsprozesse als Trennverfahren denkbar.



Sie wurden bis Ende der 70er Jahre nie ernsthaft als HEAD-END-Verfahren in Erwägung gezogen. Die Gründe hierfür sind trivial. Gegenüber der Verbrennung sind alle Prozesse nur mit einem wesentlich höheren technologischen Aufwand zu realisieren. Sie



produzieren ein brennbares (C-haltiges) Gasgemisch, so daß man auch bei einer Nachverbrennung, wie beim Verbrennungs-HEAD-END, ein Kohlenstoff-haltiges Gas erhält. Lediglich unter einer anderen Betrachtungsweise wurden sie diskutiert und zwar in einer HEAD-END-Strategie, bei der auch noch der Graphit rezykliert wird. Unter dem alleinigen Aspekt als Trennverfahren scheiden sie von vornherein aus. In Kap. 4 soll hierzu näher Stellung genommen werden.

#### 2.2.2.3 Zusammenfassung

Die Abtrennung des Graphits durch seine Umsetzung geschieht am vorteilhaftesten durch ein Verbrennungsverfahren. Vergasungsprozesse sind auch möglich, aber technologisch aufwendiger. Das Verbrennungsgas verläßt das Reaktionsgefäß, zurück bleibt eine Schwermetallasche. Die Reaktionsgeschwindigkeit kann durch eine Verbrennung zerkleinerter Brennelemente stark erhöht werden. Als Zerkleinerungsverfahren eignen sich hierfür Prozesse, bei denen die beschichteten Partikeln weitgehend intakt bleiben.

### 3. WEITERBEHANDLUNG DES ABGETRENNTEN GRAPHITS

Neben der Grundanforderung an ein HEAD-END-Verfahren, den Trennprozeß einfach und mit der nötigen Trennschärfe zu bewerkstelligen, darf natürlich die Weiterbehandlung der voneinander getrennten Stoffe nicht außer Acht gelassen werden.

Desintegration und Trennung erzeugen zwei Materialströme im HEAD-END (siehe Abb. 16):

1. Den Strom, der das Schwermetall und die meisten Spaltprodukte enthält; dieser Strom soll hier nicht weiter betrachtet werden, obwohl einige Trennverfahren wie u.a. GRIND-LEACH die Weiterbehandlung dieses Produktes nahezu unmöglich machen und

2. den Strom, der den Brennelementgraphit enthält.

Nach dem Trennschritt kann der Kohlenstoff je nach HEAD-END-Verfahren in folgenden Formen vorliegen:

1. Ungebunden, als Graphitstaub oder -schlamm (GRIND-LEACH, CHLORINEX, alle physikalischen Trennverfahren) und
2. gebunden in  $\text{CO}_2$ , CO,  $\text{CH}_4$  oder evtl. in andere höherwertige Kohlenwasserstoffe (Verbrennungs-, Vergasungsverfahren).

#### Zur ungebundenen Form

Man teilt radioaktive Abfälle in die Kategorien leicht-, mittel- und hochradioaktiv ein (LAW, MAW, HAW). Abfallmengen sollen ein geringes Volumen einnehmen und große volumige Abfälle sollten möglichst so aufbereitet sein, daß sie als leicht- oder zumindest als mittelradioaktiv einzustufen sind. Die zur Endlagerung bestimmten Abfälle sollten auslaug- und entzündungs-sicher verpackt oder gebunden sein. Da Graphit brennbar ist, muß er, bevor er eingelagert werden kann, mit einem Binder versehen werden, so daß er auch bei Luftzufuhr schwer entflammbar ist. Graphitschlämme müssen vorher noch eingetrocknet werden.

Die Einstufung des Abfalls in eine der Aktivitätskategorien ist stark von den vorangegangenen Prozessen abhängig. Gewährleistet man ein Intaktbleiben der beschichteten Schwermetallpartikel oder wie beim CHLORINEX-Prozeß auch ein Mitverflüchtigen von Spaltprodukten, dann ist es möglich, den Graphitrückstand als mittel- oder evtl. sogar schwachradioaktiv zu klassifizieren, während hingegen die Graphitabfälle des GRIND-LEACH-Prozesses als hochradioaktiver Abfall einzustufen sind [14].

Bei 5000 MWe installierter HTR-Leitung wären jährlich ca.  $1000 \text{ m}^3$  einzulagern.

Für physikalische Trennverfahren mit den verschiedenen Desintegrationsprozessen sind spezielle Vorbehandlungsschritte notwendig, um entweder das Desintegrationsmittel auszutreiben oder

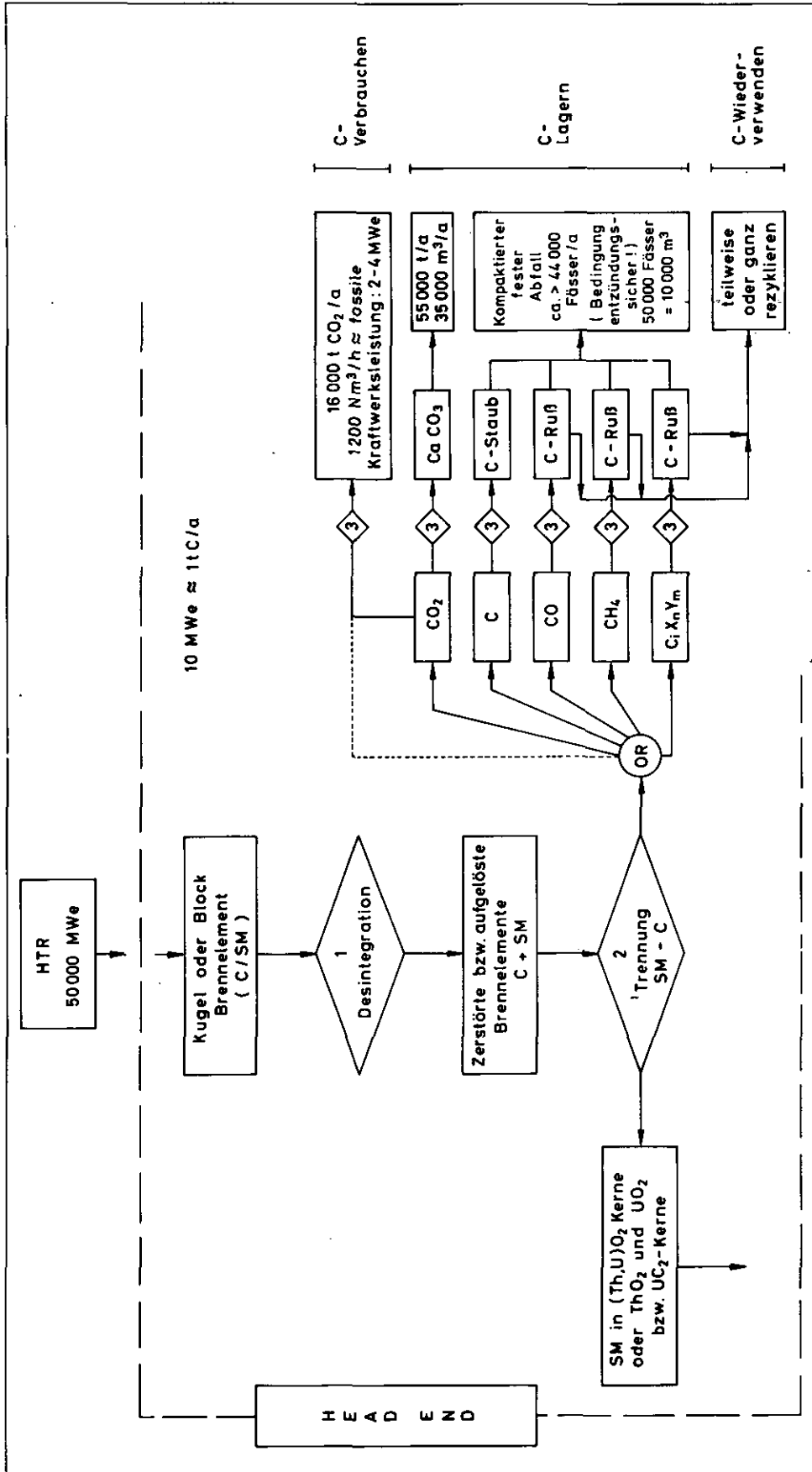


Abb. 16: C/SM-Trennung im Head-End

den entstandenen Schlamm einzutrocknen. Graphitstäube, wie sie nach einer mechanischen Desintegration anfallen würden, müssen verfestigt werden.

Zwar zielten die meisten früher geplanten und in Kap. 2.1 auch aufgezählten Verfahren darauf ab, den Graphit in dieser Art zu erhalten und zu behandeln, aber, wie bereits dargelegt, erfüllen sie meist noch nicht einmal Grundvoraussetzungen, wie z.B. hinreichende Trennung und Einsatzmöglichkeit in Heiße Zellen. Hinzu kommen große Mengen an C-Abfall, der besonders behandelt werden muß und evtl. sogar hochradioaktiv ist.

#### Zu den gebundenen Formen des Kohlenstoffes:

Der Kohlenstoff der Brennelemente reagiert mit Sauerstoff oder Wasserstoff, er wird umgesetzt und liegt dann gasförmig vor. Das entstandene Gas kann von Spaltprodukten, Edelgasen und Stäuben gereinigt werden, so daß die Gase nahezu in reiner Form vorliegen können (siehe Kap. 5.3.5).

#### Zum Endprodukt $\text{CO}_2$ :

Es entsteht durch Verbrennung, vorzugsweise durch die Wirbelschichtverbrennung. Bei einer Entsorgungsleistung für ca. 50000 MWe fallen ca. 16000 t  $\text{CO}_2$ /a  $\approx 1200 \text{ Nm}^3/\text{h}$  an, dies entspricht einer fossilen Kraftwerkleistung von 2 bis 4 MWe.

Es wurde bereits erwähnt, daß man das Abgas soweit reinigen kann, daß nur noch  $\text{CO}_2$  abgegeben zu werden braucht; dies ist dann die einfachste Art der C-Behandlung. Neuere Untersuchungen haben nun aber gezeigt, daß die Kontamination des  $\text{CO}_2$  mit C-14 nicht, wie früher angenommen, vernachlässigbar ist (siehe Kap. 4). Aus radioökologischen Gründen muß damit gerechnet werden, daß eine weitgehende Rückhaltung notwendig wird. Diskutiert wird eine  $\text{CO}_2$ -Fixierung in  $\text{CaCO}_3$ , hierbei würden für eine Wiederaufarbeitungskapazität von 5000 MWe 5500 t  $\text{CaCO}_3$  pro Jahr etwa  $3400 \text{ m}^3/\text{a}$  fester, schwachradioaktiver Abfall entstehen, dies ist also die 3,5-fache Menge an C-Abfall gegenüber den vorher beschriebenen Trennverfahren.

Zu den Endprodukten CO und CH<sub>4</sub>:

Sie entstehen vorzugsweise durch Vergasungsprozesse mit reinem Wasserstoff oder Wasserdampf. Diese Gase eröffnen die Möglichkeit, den Kohlenstoff als Ruß zurückzugewinnen zu können. Hierbei würde in einer 5000 MWe Anlage der geringste Abfallstrom entstehen und zwar nur ca. 800 m<sup>3</sup> jährlich. Dieser Abfall wäre als schwachradioaktiv einzustufen, eine Vorreinigung - wie bei der Verbrennung - vorausgesetzt.

Solche Verfahren sind bislang noch nicht als HEAD-END-Verfahren diskutiert worden, deswegen sollen sie in Kap. 4 vorgestellt werden.

Zusammenfassung

Am Beispiel eines 5000 MWe-HEAD-END's ergeben sich folgende einzulagernde Volumen:

- 1 a) Mechanisches-, CHLORINEX-, physikalisches HEAD-END  
1000 m<sup>3</sup> MAW (5000 Standardfässer) jährlich
- b) GRIND-LEACH  
1000 m<sup>3</sup> HAW (5000 Standardfässer) jährlich
2. Verbrennungs-HEAD-EBD
  - a) Abgas 1600 t CO<sub>2</sub>/a  $\approx$  120 Nm<sup>3</sup>/h, kein fester C-Abfall
  - b) CO<sub>2</sub>-Verfestigung  
3500 m<sup>3</sup> LAW (17500 Standardfässer) jährlich
3. Vergasungs-HEAD-END  
800 m<sup>3</sup> LAW (4000 Standardfässer) jährlich

Zur Bewertung der HEAD-END-Verfahren sind zusätzlich zum Trennprozeß

- a) die Mengen der anfallenden Stoffe,
- b) die Aktivitätsklasse und
- c) das Abfallbehandlungsverfahren

zu betrachten.

Wegen der großen C-Abfallmengen diskutiert man gelegentlich die Wiederverwendung des abgetrennten Graphits.

Dies wäre die eleganteste Art, den Brennelementgraphit zu beseitigen. Obwohl in mehreren allgemein gehaltenen Veröffentlichungen zum HTR-Brennstoffkreislauf diese Art als Moderatorkreislauf (closed moderator cycle) bekannt geworden ist, wurde sie von Fachleuten nie ernsthaft in Betracht gezogen. Eine Darstellung, in der die Realisierung des Moderatorkreislaufes näher untersucht wird, ist nicht bekannt geworden. Die Möglichkeiten eines solchen Rezyklierens des Brennelementgraphits seien nachfolgend für den ungebundenen und gebundenen Graphitrückstand kurz diskutiert.

Zur Wiederverwendung ungebundener Graphitrückstände, wie sie z.B. nach mechanischen oder chlorierenden Verfahren anfallen: Diese Stäube unterscheiden sich in ihren chemischen und physikalischen Eigenschaften deutlich vom frischen Pulver, das bei der Brennelementherstellung verwendet wird. Diese Änderungen in der Beschaffenheit des Graphits werden verursacht durch chemische, mechanische und thermische Eingriffe bei der Produktherstellung. Als solche kommen in Betracht: Bestrahlung im Reaktor, chemische Reaktionen, wie interlamellare Bildung von Graphitsalzen oder Oxidationsprodukten in einem chemischen Head-End, Aufnahme von Spaltprodukten. Dieser Graphit ist wahrscheinlich als mitteleradioaktiv anzusprechen, beim GRIND-LEACH sogar als hochradioaktiver Abfall.

Wirtschaftliche Gesichtspunkte sprechen gegen eine komplette fernbediente und strahlenabgeschirmte Refabrikation von Partikeln und Brennelementen. Das Dekontaminieren, Reinigen und Rekonditionieren des Graphits zu einem Pulver, das offen gehandhabt werden kann und den strikten Spezifikationen genügt, würde, wenn überhaupt möglich, ferngesteuerte Anlagen erfordern. Die durchzusetzenden Mengen würden den Umfang der eigentlichen Head-End-Anlage um ein Mehrfaches übersteigen. Die Wiederverwendung dieser Graphitrückstände ist daher auszuschließen.

Hingegen erscheint die Wiederverwendung des Graphits, das durch Vergasungsprozesse mit anschließender Reaktionsgasspaltung entsteht, aussichtsreicher. Falls nämlich der Graphit in der Trenn-

stufe zu  $\text{CO}$ ,  $\text{CH}_4$  oder höherwertigen Kohlenwasserstoffen umgesetzt wurde, eröffnet sich die Möglichkeit, einen Kohlenstoffrückgewinnungsprozeß anzuschließen.

Wegen der C-14-Problematik wird eine Rußrückgewinnung aus  $\text{CH}_4$  für einen Moderatorkreislauf in [66] und [75] vorgeschlagen, da bekanntlich Methan oberhalb  $1000^\circ\text{C}$  zu Ruß und Wasserstoff zerfällt. Diese Idee wird relativ oft zitiert, sie wird deshalb in Kap. 4 im Zusammenhang mit einer Gesamtdarstellung des C-14-Problems diskutiert.

#### 4. DAS C-14-PROBLEM UND SEINE AUSWIRKUNGEN AUF DAS HEAD-END

##### 4.1 Bildung und Eigenschaften des Kohlenstoffisotops C-14

Während des Einsatzes im Kernreaktor werden durch kernphysikalische Umwandlungen aus den stabilen Nukliden N-14, O-17 und C-13 das radioaktive Nuklid C-14 gebildet (Abb. 17).

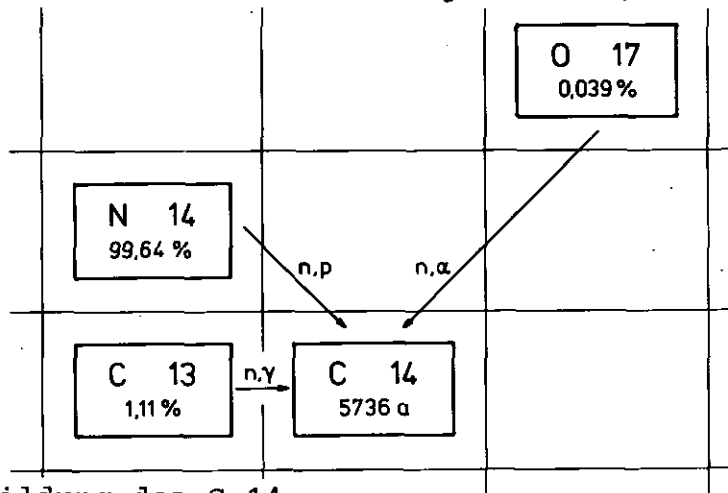


Abb. 17: Bildung des C-14

Ausschnitt aus der Nuklidkarte

C-14 entsteht in Kernreaktoren überwiegend als Aktivierungsprodukt aus Verunreinigungen im Brennelement, im Kühlmedium, sowie an der äußeren Oberfläche des Druckbehälters.

Bei Hochtemperaturreaktoren (HTR) spielen die Stickstoffverunreinigungen in der Graphitmatrix der Brennelemente, im Brenn-

Kohlenstoff-14 Produktionsrate (Ci/GWe-a)						
	Isotop	BONKA [76]	FOWLER [77]	HAYES [78]	KELLY [79]	DAVIS [80]
<u>SWR</u>						
Brennstoff	O-17	8,4	4	10,9	2,7	32,1
	N-14	12,9	18	21,2	10,9	
Kühlmittel	O-17	9,9	8,9	11,5		4,7
	N-14	1,3	0,26	-	16	
gesamt		32,5	31	43,6	29,6	36,8
<u>DWR</u>						
Brennstoff	O-17	7,1	4	4	2,7	28,3
	N-14	12,2	18	7,6	0,9	
Kühlmittel	O-17	9,8	3,2	3,3		5,0
	N-14	1,3	0,09	0,1	6	
gesamt		30,4	25	15	19,6	33,3
<u>HTR</u>						
Brennstoff	C-13	76,7			21,0	
	N-14	2,7			43,0	
	O-17	2,3			2,4	
gesamt		81,8			66,4	175
<u>SBR</u>						
Brennelement	N-14	16,1				6,3
	O-17	0,5				
Oberfl. Druck- gefäß	N-14	20				12,8
gesamt		36,6				19,1

Abb. 13: C-14 Produktionsraten



stoff selbst, sowie im Helium-Kühlgas die wichtigste Rolle. Zusätzlich wird wahrscheinlich C-14 im Reflektorgraphit des HTR-Cores gebildet.

In Abb. 18 sind theoretisch berechnete C-14-Produktionsraten in Kernreaktoren der 1. und 2. Generation zusammengestellt.

Aufgrund unterschiedlicher Annahmen bezüglich Kohlenstoff-, Stickstoff- und Sauerstoffverunreinigungen im Kühlmedium und Brennelement kommen die in Abb. 18 aufgeführten Autoren zu den folgenden, differierenden C-14-Produktionsabschätzungen.

Bei den englischen MAGNOX- und AGR-Reaktoren liegt die C-14-Produktionsrate bei etwa 100 bzw. 25 Ci/GWe-a. Die C-14-Bildung in den Strukturmaterialien der LWR's und HTR's ist in Abb. 18 nicht angeführt. DAVIS [80] schätzt die C-14-Produktion im LWR-Strukturmaterial auf 18 - 46 Ci/GWe-a und beim HTR durch Aktivierung des Reflektorgraphits auf 26 Ci/GWe-a. Diese zuletzt erwähnten Bildungsraten in Strukturmaterialien tragen nur unerheblich zur Kontamination des Kühlmediums bei. Außer eventueller Ausgasungsvorgänge oder Korrosionsabrieberscheinungen verbleibt der größte C-14-Anteil in den Materialien und wird nach Stilllegung des Reaktors einem Endlager zugeführt.

Von der in Abb. 18 angegebenen gebildeten C-14-Menge wird im Kernkraftwerk nur derjenige Anteil freigesetzt, der im Kühlmedium und an der Oberfläche des Druckgefäßes entsteht, während mit der Emission des C-14-Inventars der Brennelemente erst bei der Wiederaufarbeitung zu rechnen ist (Abb. 19).

Reaktortyp	Aktivität C-14 [Ci/GW <sub>el</sub> ·a]		
	Freigesetzt		Abgelagert
	Reaktor	WAA	
DWR	11,0	15,5	3,9
SWR	11,2	18,3	3,0
HTR	< 0,1	81,8	-
SBR	20	2,1	14,4

Abb. 19: C-14-Aktivitätsangabe im Reaktor und in einer Wiederaufarbeitungsanlage [76]

In Übereinstimmung mit einer Konzeptstudie zur Wiederaufarbeitung von HTR-Brennelementen [63] werden zur Berechnung der C-14-Emissionbelastung durch Ableitung des gereinigten CO<sub>2</sub>-Abgases folgende Annahmen getroffen: Die Kapazität der geplanten 50.000 MWe-Anlage reicht aus, um die Brennelemente von ca. 43 HTR 1160-MWe-Reaktoren aufzuarbeiten. Bei stationärem Betrieb der installierten HTR 1160-Reaktoren verbleiben die Brennelemente ca. 4 Jahre im Core; die Anzahl der jährlich aus einem HTR 1160-MWe entladenen BE beträgt 1/4 des gesamten C-14-Inventars  $\hat{=}$  616.000 BE-Kugeln/a.

Anzahl der BE-Kugeln pro 50.000 MWe und a	$2,65 \cdot 10^7$
Graphitdurchsatz pro a	5088 t
CO <sub>2</sub> -Abgasmenge pro a	9422 Nm <sup>3</sup>
C-14-Aktivität pro BE-Kugel bei einer Reaktorstandzeit von 4 Jahren	200 $\mu$ mCi/Be
gesamte C-14-Emission	5300 Ci/a [0,56 Ci/Nm <sup>3</sup> CO <sub>2</sub> ·a]

Die Verfügbarkeit der Anlage beträgt 300 Tage/Jahr bei 3-Schichtbetrieb.

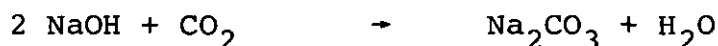
Wegen seiner langen Halbwertszeit von 5736 Jahren und der dadurch bedingten langen physikalischen Verweilzeit würde die Freisetzung des kontaminierten Abgases zu einer Anreicherung des C-14 Inventars in der Troposphäre führen. Bei einer 14-C- Radioaktivität von 5300 Curie/a, die bei der Wiederaufarbeitung von 50 GigaWatt elektrisch installierter HTR-Leistung je Jahr gehandhabt werden müssen, erhöht sich die durch das emittierte C-14 erzeugte Strahlendosis um 1/3, bezogen auf den Normalpegel des natürlichen C-14 für eine Person in der Nachbarschaft einer Wiederaufarbeitungsanlage, d.h. auf 1,3 mrem/a. Hieraus ergibt sich evtl. die Notwendigkeit, in Zukunft den Brennelementgraphit nicht mehr als Kohlendioxid freizusetzen, sondern entweder in eine endlagerungsfähige Form zu bringen

und zu lagern oder in Gestalt eines "closed moderator cycle" wiederzuverwenden.

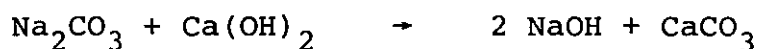
#### 4.2 Verfahren zur Rückhaltung des C-14 Inventars aus einem HEAD-END

##### 4.2.1 CO<sub>2</sub>-Fixierung in Calciumcarbonat

Diese Verfahrensweise verursacht keinen Eingriff in das bewährte Wirbelschichtverbrennungs-HEAD-END. Das Kohlendioxid des gereinigten Abgases reagiert in einer alkalischen Wäsche [81] zunächst mit NaOH zu Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>:



Durch Umsetzung von Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> mit Kalkmilch Ca(OH)<sub>2</sub> entsteht ein lagerfähiges CaCO<sub>3</sub>-Produkt:



Die anfallende Natronlauge kann wieder in den ersten Verfahrensschritt rezykliert werden.

Vorteile des Verfahrens sind: Einfache Prozeßführung und -auslegung, beherrschbare Korrosion, kostengünstige Betriebsweise.

##### 4.2.2 Technische Kurzbeschreibung der CO<sub>2</sub>-Fixierung

Abb. 20 zeigt ein Fließdiagramm des Gesamtprozesses mit den jeweiligen Mengenströmen. Der Rührkesselbetrieb erfolgt diskontinuierlich, so daß nach Ablauf der Reaktion in einer Charge der CO<sub>2</sub>-Strom auf einen zweiten Carbonisierungsbehälter umgeschaltet werden muß. Der erste Kessel wird entleert und mit einer weiteren Kalkmilchvorlage beschickt. Die abgezogene Kalziumcarbonatsuspension wird in einem kontinuierlich betriebenen Sedimentbecken einem Absetzvorgang unterzogen. Die klare Überstandsflüssigkeit wird ständig abgepumpt und in den zum Hydrieren des Branntkalks, CaO, notwendigen Löschtank re-

zykliert. Der abgesetzte  $\text{CaCO}_3$ -Kuchen wird in gerade noch fließfähiger Form über den Boden des Sedimentbeckens abgezogen oder bei Fortschreitung der Kompaktierung im Becken mittels spezieller Ausräumvorrichtungen ausgetragen. Das stichfeste  $\text{CaCO}_3$ -Produkt mit einer Restfeuchte von etwa 50 Gew.-%  $\text{H}_2\text{O}$  kann dann in verpackter, unverpackter, gebundener oder ungebundener Form endgelagert werden.

Bei diesem Verfahren fallen pro Jahr  $3500 \text{ m}^3$  radioaktiver Abfall an (aus einer Entsorgungsleistung von 5000 MWe). Unter der Voraussetzung, daß das HEAD-END-Abgas vor dem Carbonisierungsprozeß von Spaltprodukten in Gestalt von Aerosolen und Gasen (entsprechend dem AKUT-Verfahren) gereinigt ist, kann dieser Abfall als schwachradioaktiv eingestuft werden. Die Endlagerung dieser verhältnismäßig großen Volumina ist teuer.

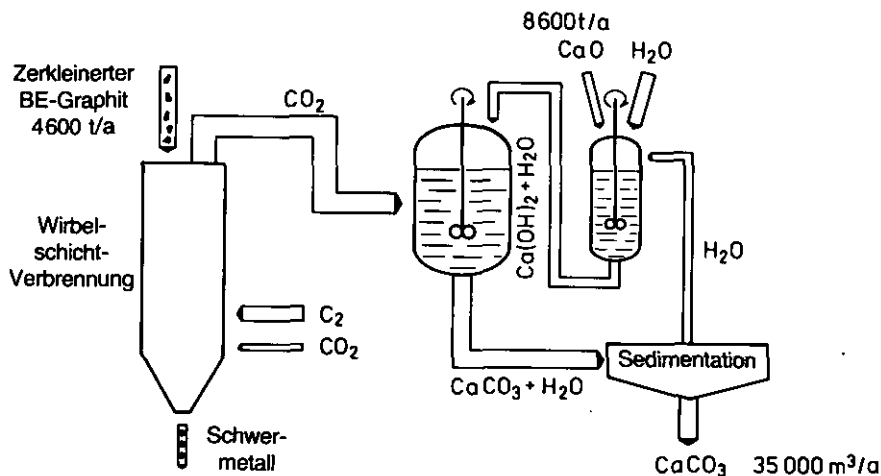
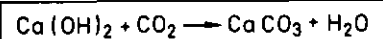


Abb. 20: Verbrennungs-HEAD-END mit anschließender Kalzinierung des Kohlendioxids



#### 4.2.3 Retention des kontaminierten HEAD-END-Abgases durch Spaltung in seine Komponenten

##### 4.2.3.1 Vergasung des Graphits als HEAD-END-Trennschritt

Die direkte thermische Spaltung von Kohlendioxid in seine Bestandteile verbietet sich aus energetischen Gründen. Allerdings ist die pyrolytische Zersetzung von Kohlenstoffverbindungen mit relativ niedriger Bindungsenergie wie Kohlenmonoxid, Methan und Acetylen zu festem Kohlenstoff in der Gestalt von Ruß und der gasförmigen Komponente technisch realisierbar. Diese Qualität

des HEAD-END-Abgases wird erreicht, indem die Verbrennung des Kohlenstoffs durch eine Vergasung ersetzt wird.

In der Abb. 21 ist links die konventionelle Wirbelschichtverbrennung mit anschließender Fixierung des Kohlendioxids als Kalziumcarbonat dargestellt und auf der rechten Seite die alternative Prozeßführung mit einem Wirbelschichtvergasungsreaktor und anschließender Kohlenstoffabspaltung.

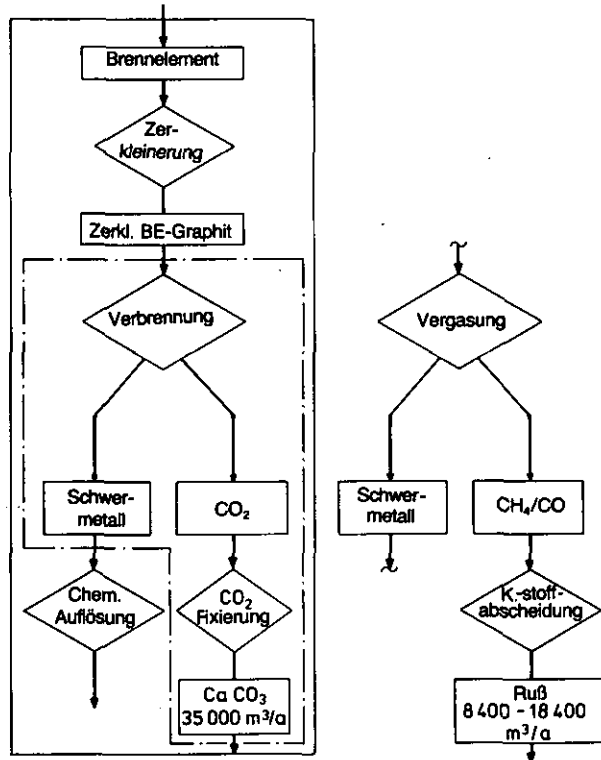


Abb. 21: HEAD-END-Prozeß

Wirbelschicht: -Verbrennung, -Vergasung

Während bei der Verbrennung der Prozeß zur Trennung der Schwermetall-Partikeln vom Matrixgraphit, den Graphit in das gasförmige Kohlendioxid umwandelt, läßt sich durch Vergasungsprozesse, wie die Entwicklungen der konventionellen Kohletechnologie zeigen, stattdessen der Graphit in Kohlenmonoxid oder Methan überführen. Dabei ist von Vorteil, daß beim Einsatz des Wirbelschichtverfahrens ebenfalls die Erfahrungen aus dem Verbrennungsbetrieb genutzt werden können wie z.B.

- Konstruktion des Anströmbodens,
- Ausschleusung des sedimentierten Schwermetalls und
- Rückspeisung des Feinstaubes.

In Abbildung 22 sind die bei den hier vorgestellten Umwandlungen ablaufenden chemischen Reaktionen zusammengestellt. Die Verbrennung verläuft nach den Gleichungen 1a und 1b, wobei die Produktgaszusammensetzung stark von der Boudouard-Beziehung beeinflusst wird. Im Wirbelschichtofen entstehen ca. 90 % Kohlendioxid und 10 % Kohlenmonoxid.

An der Wasserdampfvergasung sind vornehmlich die Gleichungen 2 bis 5 beteiligt. Die Methanbildung ist jedoch wegen den vorherrschenden geringen Betriebsdrücken zu vernachlässigen. Neben 50 % Wasserstoff entstehen ca. 30 % Kohlenmonoxid und 15 % Kohlendioxid.

Die einfachste Umsetzung stellt die exotherme Methanbildung nach Gleichung 5 dar. Allerdings ist nur eine mäßige Gleichgewichtsausbeute zu erreichen, da dieser eine notwendige Temperaturerhöhung mit dem Ziel erhöhter Umsätze entgegenwirkt. Außerdem ist ein Wasserstoffpartialdruck im Bereich von 100 bar erforderlich [68].

Reaktion	(kJ/mol)	Prozeß	Produkt-Gas (Hauptbestandteile)		
Verbrennungs-Reaktion					
1) a. $C + 1/2 O_2 \rightleftharpoons CO$	- 123	} Verbrennung	90 % $CO_2$ 10 % CO		
1) b. $CO + 1/2 O_2 \rightleftharpoons CO_2$	- 283				
Boudouard-Reaktion					
2) $C + CO_2 \rightleftharpoons 2 CO$	+ 160,9	} Wasserdampf- vergasung	50 % $H_2$ 30 % CO 15 % $CO_2$ 5 % $CH_4$		
heterogene Gas-Reaktion					
3) a. $C + H_2O \rightleftharpoons H_2 + CO$	+ 118,5				
3) b. $C + 2 H_2O \rightleftharpoons 2 H_2 + CO_2$	+ 16,3				
homogene Gas-Reaktion					
4) a. $CO + H_2O \rightleftharpoons H_2 + CO_2$	- 42,3	} Wasserstoff- vergasung	80 % $H_2$ 20 % $CH_4$		
4) b. $CO + 3 H_2 \rightleftharpoons CH_4 + H_2O$	- 206,6				
heterogene Methanbildung					
5) $C + 2 H_2 \rightleftharpoons CH_4$	- 83,8				

Abb. 22: Kohlenstoffumwandlungsreaktionen

#### 4.2.3.2 Wasserdampfvergasung mit anschließender Kohlenmonoxid-spaltung

##### 4.2.3.2.1 Grundlagen

Bei der Kohlenmonoxid-Verfahrenslinie ist der Vergasungsprozeß dadurch gekennzeichnet, daß er im Interesse hoher Kohlenmonoxid-

ausbeuten bei niedrigem Druck durchgeführt wird. Die Reaktionen laufen schon bei Temperaturen ab  $400^{\circ}\text{C}$  mit für technische Zwecke ausreichender Reaktionsgeschwindigkeit ab. Als Vergasungsmittel gelangen einerseits reiner Sauerstoff und andererseits Wasserdampf zum Einsatz.

Von besonderer Bedeutung ist die Art der Prozeßführung, da auf jeden Fall die Einstellung des chemischen Gleichgewichts entsprechend der Boudouard-Beziehung zugunsten der Kohlendioxidbildung unterdrückt werden soll, d.h., es muß eine hohe Gasaustrittstemperatur im Bereich von  $1000^{\circ}\text{C}$  angestrebt werden. Hierzu eignet sich vorzüglich ein Gasgenerator nach dem Wirbelschichtprinzip, der zum einen wegen seines unkomplizierten Aufbaus mit relativ wenig Aufwand fernbedient betrieben werden kann und zum anderen wegen seines homogenen Temperaturverlaufs hohe Austrittstemperaturen gewährleistet.

Als Produktgas entsteht ein Gemisch aus Kohlenmonoxid, Wasserstoff und geringen Mengen an Kohlendioxid und Methan. Nach der Gaszerlegung wird in einer Mischstufe ein Gasverhältnis  $\text{CO}$  zu  $\text{H}_2$  von 3 zu 1 eingestellt, da die Anwesenheit von Wasserstoff im Spaltgas den Zerfallsbereich des Kohlenmonoxids zu höheren Temperaturen erweitert. Dies wird durch die reduzierende Wirkung des Wasserstoffs auf das schon gebildete Kohlendioxid bewirkt. In dem Spaltapparat fällt der Kohlenstoff an einem im Kreislauf geführten Eisenkatalysator bei  $500 - 600^{\circ}\text{C}$  aus. Da dieser Zerfall vom Boudouard Gleichgewicht kontrolliert ist, fällt nur die Hälfte des in Form von Kohlenmonoxid zugeführten Kohlenstoffs aus und die andere Hälfte wird durch die Anlagerung des freigesetzten Sauerstoffatoms in Kohlendioxid übergeführt. Das Verfahrensschema ist in Abbildung 23 dargestellt [69].

#### 4.2.3.2.2 Verfahrenskombination

Betreibt man die Kohlenmonoxidspaltung in einer dreistufigen Kaskade, -Linie "a" in Abb. 24 - so fallen unter der Annahme, daß der Spaltungskohlenstoff mit einer Packungsdichte von 80 % abgelagert werden kann,  $8400 \text{ m}^3$  Abfall je Jahr an. Gegen-

über der Kalzinierung zu Kalziumcarbonat ergibt sich eine Volumenverminderung von 76 %. Jedoch sind im Abgas der letzten Prozeßstufe noch 14 % des ursprünglichen Brennelement-Graphits enthalten, der unter Umständen in starker Verdünnung an die Umgebung abgegeben werden kann.

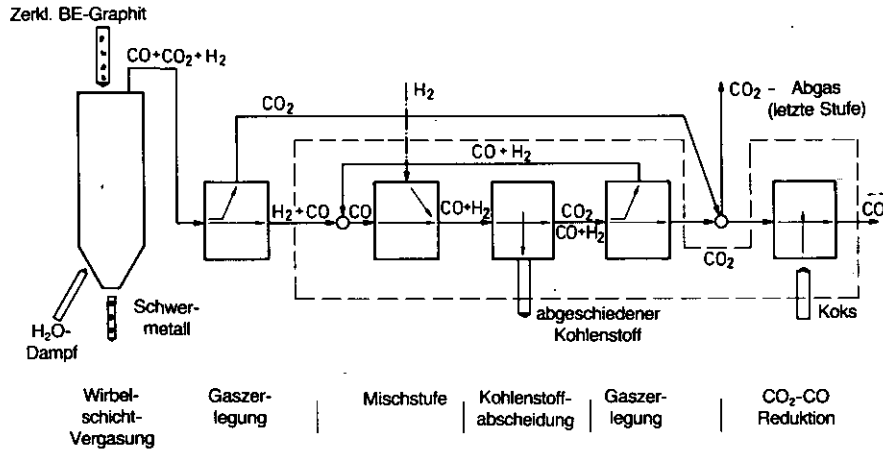


Abb. 23: Wasserdampfvergasung mit anschließender Kohlenmonoxidspaltung

Besteht die Möglichkeit nicht, empfiehlt es sich, - Linie "b" - das Vergasungsgas in einer einstufigen Spaltanlage zu zerlegen und die Restmenge Kohlendioxid, als Kalziumcarbonat gebunden, abzulagern. Dann ergeben sich jährlich 18.400 m<sup>3</sup> schwachradioaktiver Abfall.

Eine dritte Möglichkeit - Linie "c" - besteht darin, das aus dem Wasserdampf-Vergaser austretende Gasgemisch in einem Methanisierungsschritt in Methan umzuwandeln und dann den Kohlenstoff über die Kohlenwasserstoffpyrolyse, auf die weiter unten eingegangen wird, abzuscheiden. Bei dieser Prozeßkombination würde die wegen der niedrigen Drücke und Temperaturen reaktionstechnisch einfache Wasserdampfvergasung mit der verfahrenstechnisch simplen und großtechnisch erprobten Kohlenwasserstoffpyrolyse kombiniert.

Allerdings können noch keine Aussagen über die Prozeßauslegung der katalytischen Kohlenmonoxid-Methanisierung gemacht werden, so daß über die Realisierungschancen dieses sicherlich aufwendigen Verfahrensschrittes keine Angaben möglich sind.



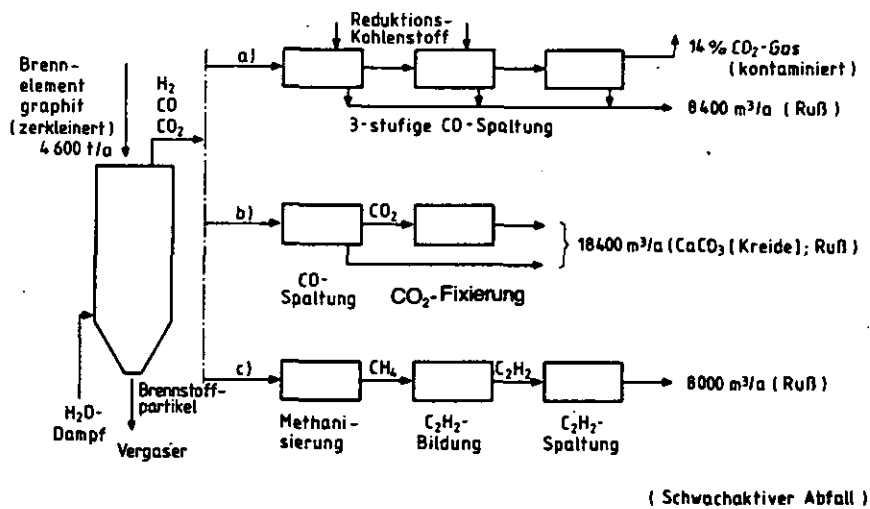


Abb. 24: Kombinierte Prozesse zur CO-Spaltung

#### 4.2.3.3 Kerntechnische Randbedingungen

In Versuchen mit hochreinem Reaktorgraphit, der einen Ascheanteil von 170 ppm aufwies, wurde unter identischen Bedingungen bei der Vergasung mit Wasserdampf eine ca. 20fach höhere Kohlenstoffumwandlungsrate im Vergleich zur Wasserstoffvergasung gemessen [70]. Dieser Vorteil geht allerdings wieder verloren, wenn das Verfahren im HEAD-END unter kernphysikalischen Randbedingungen eingesetzt werden soll. Ursache hierfür ist die Gewährleistung der Kritikalitätssicherheit.

An keiner Stelle, insbesondere im Vergasungsreaktor, darf sich durch die im unteren Teil des Vergasers sedimentierten Schwermetallpartikel, die je nach Brennstoffkonzept aus angereichertem U-235, Thorium oder U-233 bestehen, auch unter Störfallbedingungen, eine geometrisch kritische Anordnung bilden. Das bedeutet für die Dampfvergasung, daß aufgrund eines Wassereinbruchs als angenommenen Störfall wegen der moderierenden Wirkung der maximale Durchmesser auf 0,22 m begrenzt ist [71].

Bei einem Wasserstoff-Vergaser ist ein Durchmesser bis 0,5 m möglich, d.h. es steht ein fast 100fach größeres Reaktionsvolumen je Baueinheit zur Verfügung, so daß die physikalisch bedingte Trägheit dieser Umsetzung mehr als ausgeglichen wird.

#### 4.2.3.4 Wasserstoffvergasung des Graphits

##### 4.2.3.4.1 Verfahrenskonzept "Kohlenwasserstoffpfad"

Die Wasserstoff-Vergasung des BE-Graphits wird zweckmäßigerweise in einem Wirbelschichtreaktor durchgeführt (Position 1 in Abb. 25). Die Verfahrensweise unterscheidet sich allerdings von der oben erwähnten Kohlenmonoxidvergasung dadurch, daß diese Umsetzung bei einem Druck von mindestens 100 bar ablaufen muß, um eine ausreichende Gleichgewichtsausbeute zu erhalten. Hohe Reaktionstemperaturen senken zwar ebenfalls den Methanpartialdruck im Produktgasstrom, aber aufgrund der Trägheit sind Temperaturen im Bereich von 1000 bis 1200°C erforderlich [68].

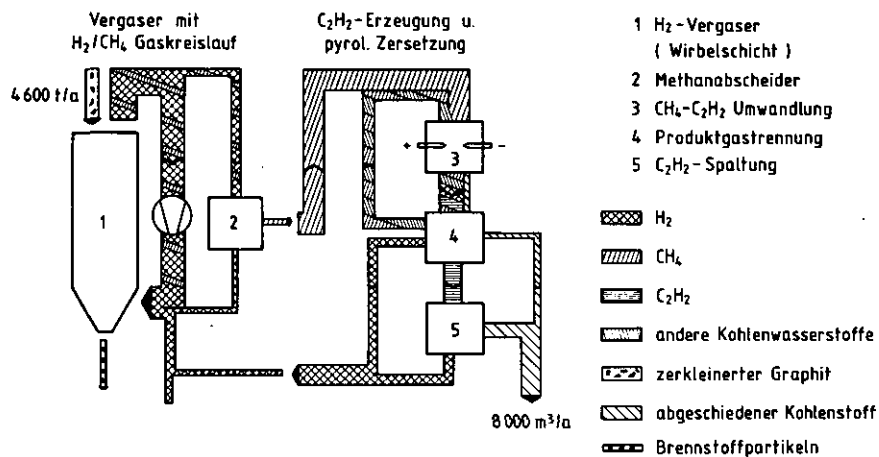


Abb. 25: Wasserstoff-Vergasung mit Kohlenwasserstoffspaltung

Infolge der naturgemäß kurzen Verweilzeit des Vergasungsmittels in der Reaktionszone findet nur eine geringfügige Anreicherung mit Methan statt. Deswegen wird der Hauptstrom des Wasserstoff-Methan-Gemisches im Gaskreislauf betrieben und nur aus einem Teilstrom das Produkt "Methan" im Abscheider (Position 2) abgetrennt. Dies ist möglich, da keine inhibierende Wirkung auf die Reaktion durch höhere Partialdrücke des Methans festgestellt wurden [68].

Physikalisch besteht die Möglichkeit, das Methan in einem Röhrenspaltfen direkt durch thermische Spaltung in seine Komponenten

zu zerlegen. Dieser Mechanismus setzt zwar schon bei  $600^{\circ}\text{C}$  ein, bringt aber erst bei  $1000^{\circ}\text{C}$  und Normaldruck genügende Ausbeute. Da einerseits sehr große Wärmemengen auf einem hohen Temperaturniveau eingebracht werden müssen, - die metallischen Spaltrohre durch Karbidbildung große Werkstoffprobleme bringen und - bei der geplanten Kapazität von 4600 t Graphit je Jahr 1100 Rohre von 5,5 m Länge und 0,1 m Durchmesser für den Spaltungsapparat erforderlich sind, erscheint dieses Konzept technisch wenig sinnvoll [72].

Da sich höhere Kohlenwasserstoffe wie z. B. Acetylen wesentlich leichter spalten lassen, wird das Methan in einem Lichtbogenofen (Position 3, Abb. 25) nach einem technisch erprobten Verfahren in Acetylen und andere höhere Kohlenwasserstoffe umgewandelt. Anschließend wird das entstandene Gasgemisch in Kohlenwasserstoffe und Wasserstoff zerlegt und der schon entstandene Ruß abgeschieden (Position 4). Das Acetylen gelangt dann in den Spaltapparat (Position 5), der ebenfalls technisch erprobt ist und zur industriellen Rußerzeugung eingesetzt wird, indem es spontan bei  $800^{\circ}\text{C}$  stark exotherm vollständig zerfällt. Die beschriebene Anlage benötigt ca. 18 MegaWatt elektrischer Leistung und führt zu einem Lagervolumen für den Brennelementgraphit von  $8000\text{ m}^3$  jährlich [72].

Die aufgezeigten Vorteile, verbunden mit den zwar energieintensiven aber verfahrenstechnisch simplen Prozessen der Acetylenumwandlung und -spaltung, räumen dem Kohlenwasserstoffpfad den Vorzug ein.

#### 4.2.3.4.2 Einsatz eines Katalysators

Forschungsarbeiten an der Tohoku Universität in Sendai, Japan, die sich mit dem katalytischen Einfluß der 9 Übergangsmetalle der 8. Hauptgruppe auf die Vergasung von technischen Kohlen befassen, haben ergeben, daß der Einsatz eines Platinkatalysators die optimale Umsatztemperatur von  $1200^{\circ}\text{C}$  auf  $800^{\circ}\text{C}$  senkt, was die Möglichkeit bietet, übliche, hitzebeständige metallische Werkstoffe zu verwenden. Außerdem lassen sich Umsatzsteigerungen um den Faktor  $10^2$  bis  $10^3$  erreichen. In dem folgenden Diagramm (Abb. 26)

ist der Unterschied der Vergasungsraten mit und ohne Katalysatoren aufgezeigt. Auffallend ist der Vergleich mit dem Platinkatalysator. Da diese Werte in Abhängigkeit von der eingesetzten Kohle stark streuen, ist es notwendig, das Verhalten von Reaktorgraphit im einzelnen zu untersuchen.

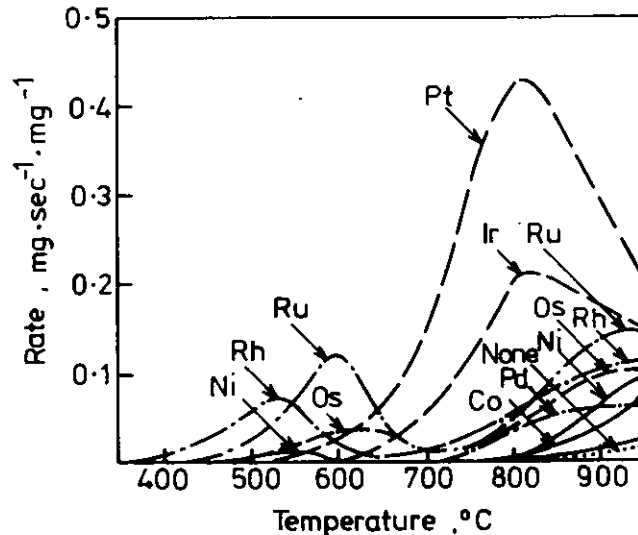


Abb. 26: Wasserstoffvergasungsrate bei Einsatz verschiedener Katalysatoren

#### 4.2.4 Wiederverwendung des abgeschiedenen Kohlenstoffs

Als weitere Möglichkeit zur Reduzierung der Abfallmengen wurde vorgeschlagen, den abgeschiedenen Kohlenstoff in einem "closed moderator cycle" als Moderator erneut zu verwenden. Diese Methode scheidet aber aus, da der bei der pyrolytischen Zersetzung des Kohlenmonoxids oder des Methans entstehende Spalt-ruß keine graphitierenden Eigenschaften besitzt. Es ist folglich nicht möglich, den Anteil an künstlichem Graphit (Elektrographit) von 16 % im Brennelement durch rezyklierten Kohlenstoff zu ersetzen. Diese Angaben beziehen sich auf den Graphittyp A3-3 und A3-27 der Fa. HOBEG, Hanau [74]. Versuche mit Mischungen aus Naturgraphit und einem Rußanteil von 5 % haben noch keine verwertbaren Ergebnisse erbracht.

Falls der Brennelementkohlenstoff in Methan umgewandelt vorliegt, wäre daran zu denken, dieses Kohlenwasserstoffgas zur Beschichtung der Brennstoffkerne einzusetzen. Der Bedarf ist

jedoch viel niedriger, nämlich bei einer jährlichen Menge von 270 t, das entspricht einem Anteil von 5,5 % bezogen auf die gesamte Abfallmenge [72]. Somit ist durch die Rezyklierung des Kohlenstoffs kein nennenswerter Beitrag im Sinne einer Verringerung der Abfallmengen zu erwarten.

#### 4.3 Zusammenfassung

Die Gegenüberstellung der drei Verfahrenswege zur Rückhaltung des mit C-14 kontaminierten Kohlenstoffes:

- Fixierung des  $\text{CO}_2$  als Kalziumcarbonat,
- Wasserdampfvergasung mit CO-Spaltung und
- der Kohlenwasserstoffpfad

verdeutlicht, daß ein Vergasungsverfahren grundsätzlich die Abfallmengen stark reduzieren kann. Es wurde aber auch gezeigt, daß

1. Vergasungsverfahren mit anschließender Spaltung technisch sehr aufwendig sind und
2. die rückgewonnenen Spaltruße nur in sehr geringen Mengen rezykliert werden können.

Somit können diese Verfahren nur schwer mit einem Verbrennungsverfahren konkurrieren, vor allem, wenn man noch eine dritte Möglichkeit in Erwägung zieht und zwar eine weitgehende Vorabtrennung des Graphits auf trocken-mechanischem Wege. Der vorabgetrennte Graphit (40 - 90 %) wird durch Zusatz eines verbrennungshemmenden Binders (z.B. Zement) zu einem monolithischen Körper verfestigt und endgelagert. Der verbleibende Graphitrest wird zu  $\text{CO}_2$  verbrannt und entweder an die Atmosphäre abgegeben oder wiederum als Kalziumcarbonat gebunden und eingelagert.

Literatur: [67,75,116,117,66].

## 5. BESCHREIBUNG DES VERBRENNUNGS-HEAD-END'S

### 5.1 Verbrennungsverfahren

In diesem Kapitel soll die Technik der Graphitverbrennung als Head-End-Methode zur Abtrennung der Schwermetalloxide von dem in den HTR-Brennelementen vorhandenen großen Graphitüberschuß detaillierter beschrieben werden. Von Anbeginn der Entwicklungsarbeiten wurden zwei Verfahren parallel untersucht: die Verbrennung in einem Schachtofen bzw. im Festbett und die Verbrennung in der Wirbelschicht.

Sowohl in den USA, wo die Arbeiten zuerst aufgenommen wurden, als auch danach weitgehend unabhängig in der Bundesrepublik Deutschland, favorisierte man wegen der einfacheren Verfahrenstechnik zunächst die Festbettverbrennung ganzer kugelförmiger Brennelemente oder Segmenten der prismatischen Brennelemente. Das Ergebnis ist bekannt: Die Wirbelschichtverbrennung erwies sich trotz des höheren verfahrenstechnischen Aufwandes schließlich als überlegen.

#### 5.1.1 Festbettverbrennung (Verbrennung ganzer Brennelemente)

Die Verbrennung ganzer Brennelemente wurde in Deutschland hauptsächlich von der Firma NUKEM, Hanau, untersucht. Es wurde ein Verfahren entwickelt und eine kleine Anlage gebaut, die wie folgt beschrieben wird [37]:

"Die Kugeln wurden pneumatisch aus einem Vorratsbehälter in einen Vorheizofen gefördert und auf  $1000^{\circ}\text{C}$  erhitzt, bevor sie in Schüben zu 20 Stück in den Verbrennungsofen abgelassen wurden. Der zylindrische Ofen hatte die lichten Abmessungen 350 mm Durchmesser mal 1100 mm. Die Wärme wurde durch die Wasserkühlung der Wand, eines zentralen Kühlfingers und des Rostes abgeführt. Als Verbrennungsgas wurde  $\text{O}_2$ -angereicherte Luft mit 30 Volumenprozent  $\text{O}_2$  verwendet, die in mehreren übereinanderliegenden Zonen

eingeleitet wurde. Das Reaktionsgas durchströmte den Ofen entgegen der üblichen Verfahrensweise von oben nach unten. Dadurch sollte sichergestellt werden, daß die Schüttung von Partikeln und Graphitstaub freigeblasen wird. Ein Windsichter im Abgasstrom sorgte für eine Trennung der Partikeln vom Staub, der nach seiner Abscheidung vor Metallfiltern pneumatisch mit Luft in die 1. Stufe des Schachtofens zurückgeführt wird.

Die 1. Stufe wurde bei der Verbrennung von mehr als 2000 Kugelelementen erfolgreich erprobt. Zur gleichen Zeit wurde in einer Quarzapparatur eine Kombination aus Fließbett und Festbett entwickelt. Dabei wurde die Erscheinung ausgenutzt, daß die abgebrannten Kerne dicht oberhalb des Lockerungspunktes der beschichteten Partikeln im Fließbett sedimentieren und sich in einer Ruheschüttung auf dem Anströmboden sammeln sollten. So ergab sich also die Möglichkeit, den hohen Wärmestrom der Wirbelschicht an eine gekühlte Wand und die einheitliche Verweilzeit des Festbettes auszunutzen. Verbrannt wurde mit  $O_2$ -angereicherter Luft. Bei einem Durchsatz von 200 g beschichteten Partikeln pro Stunde betrug der Restkohlenstoff-Gehalt weniger als 0,1 % im Verbrennungsrückstand [37]".

Aus heutiger Sicht erscheint das Durchströmen der Schüttung von oben nach unten nicht besonders günstig, denn dadurch wird die Schüttung verdichtet und somit das Brenngas nicht gleichmäßig verteilt.

In den Berichten [21-26] ist der Fortgang der Arbeiten gut wiedergegeben. Die Grundlagen hierzu wurden in einem gesonderten Bericht [38] zusammengestellt. Die Festbett-Verbrennung konkurrierte mit der Wirbelschicht-Verbrennung, die im ICT der KFA Jülich untersucht und entwickelt wurde. In einer Veröffentlichung von 1975 [7] werden beide Verfahren einander gegenübergestellt. Zu diesem Zeitpunkt war bereits klar, daß die Wirbelschichtverbrennung Vorteile aufweist und deshalb wurde die Entwicklung der Schachtofenvariante eingestellt, in den USA ein Jahr früher als in der Bundesrepublik Deutschland. Es ist davon auszugehen,

daß die schlechte Temperatursteuerung im Ofen zu diesem Entschluß beitrug. In der zitierten Literaturstelle [37] wird wegen der ungünstigen Wärmeübertragungseigenschaften - wohl als Abhilfe - ein Kombinationsprozeß vorgeschlagen.

Zusammenfassend ist festzustellen, daß folgende Gründe zu dem Entschluß geführt haben, die Festbettverbrennung zu Gunsten der Wirbelschichtverbrennung aufzugeben:

- schlechte Temperatursteuerung infolge ungünstiger Wärmeübertragungseigenschaften,
- Auftreten von lokalen Überhitzungen ("hot-spots")
- höhere Betriebstemperatur als bei Wirbelschichtfeuerung,
- gegenüber Wirbelschichtfeuerung geringere Umsätze.

Literatur: [7,37,38,113,115]

#### 5.1.2 Wirbelschichtverbrennung (Verbrennung zerkleinerter Brennelemente)

Bei der Entwicklung der Verbrennungswirbelschicht als HEAD-END-Verfahren glaubte man anfänglich, auf Zugabe eines Inertstoffes wie z.B.  $\text{Al}_2\text{O}_3$  nicht verzichten zu können. Es bestand die berechtigte Befürchtung, daß wegen des wesentlich größeren Anteils (> 90 %) an total brennbaren Bestandteilen durch das Abgas zu viel Wärme dem Verbrennungsraum entzogen wird. Außerdem glaubte man, daß ein Fließmittel nötig sei und daß ohne konstant vorhandenem Wärmeträger ein gleichmäßiges Temperaturprofil im Brennraum nicht zu erreichen ist.

Recht frühzeitig stellte man trotzdem die inertstofffreie Wirbelschichtverbrennung als HEAD-END-Prozeß vor (siehe Kap. 2.2.2.2.1 und [39]). Der Schritt von einer inertstoff-beladenen zur inertstofffreien Wirbelschichtverbrennung erhielt seinerzeit zu wenig Aufmerksamkeit. Der Erfolg war nicht selbstverständlich, sondern beruhte mehr auf dem Zusammenwirken glücklicher Umstände. Durch



geschicktes Ausprobieren der entscheidenden Parameter wie Geschwindigkeit, Verbrennungsleistung, Temperatur, in kleinen Versuchsanlagen, wurde der stabile Betriebsbereich gefunden.

Heute weiß man zwar, daß eine inertstofffreie Verbrennung möglich ist und kennt auch für Einzelanlagen die einzustellenden Betriebsbedingungen. Wenn aber z.B. ein Parameter variiert wird, dann kann oftmals die nötige Änderung der Betriebsweise nicht vorhergesagt werden. Hierzu seien die Großversuche bei der GAC 1980 [28,59] erwähnt: Für Block-Brennelemente mit bestimmten (SM:C)-Verhältnissen und Fluidisierungsbedingungen kannte man die Betriebsdaten für einen stabilen Verbrennungsbetrieb wie Temperatur, Gasmengen, Staubaustrag usw.; an der gleichen Anlage mit Kugelbrennelementen stellten sich jedoch andere Betriebszustände für den stabilen Betrieb ein, die - und dies ist von besonderer Bedeutung - z.T. an der Grenze der Leistungsfähigkeit der Anlage lagen. Hier half eine Vergrößerung des Startbettes (der unbrennbare Anteil wurde erhöht). Eine Zugabe von  $\text{Al}_2\text{O}_3$  wurde in Erwägung gezogen, aber dann doch unterlassen. Als noch zu bearbeitende Forschungsaufgabe gilt es, den stabilen Betriebsbereich allgemein gültig und apparatunabhängig für die Graphitverbrennung zu ermitteln und zu beschreiben.

In den folgenden drei Kapiteln (5.1.2.1 - 5.1.2.3) sollen einige prinzipielle Betriebsweisen vorgestellt werden.

#### 5.1.2.1 Wirbelschichtverbrennung für das Einpartikel-Brennstoffsystem mit $(\text{Th,U})\text{O}_2$ -Kernen

Die Verbrennung zerkleinerter Brennelemente dieses Typs, sei es mit oder ohne SiC-beschichtete Kerne, stellt den einfachsten Fall dar. Zum einen bleiben die  $(\text{Th,U})\text{O}_2$ -Kerne bei der Verbrennung ganz, zum anderen haben alle SM-Kerne bzw. Partikeln gleichen Durchmesser, so daß bei Wahl einer geeigneten Gasgeschwindigkeit gewährleistet wird, daß keine SM-Kerne ausgetragen werden.

Es sind prinzipiell zwei Verbrennungsmethoden hierzu bekannt:

1. Wirbelschicht-Verbrennung mit niedrigen Gasgeschwindigkeiten  $\{0,3 \text{ ms}^{-1} < v < 0,7 \text{ ms}^{-1}\}$ . Diese Verbrennungsweise wird hauptsächlich in Anlagen mit geringen spezifischen Durchsätzen bevorzugt ( $\dot{m}_c < 30 \text{ g C/h cm}^2$ ). Die Brennelemente werden hierfür auf ein Durchschnittskorn von ca.  $400 \text{ }\mu\text{m}$  zerkleinert. In den zur Verbrennungsleistung relativ großen Verbrennungsräumen ( $\hat{=}$  niedrige spezifische Leistung) kann auf diese Weise einfacher ein Unterdruck aufgebaut bzw. gehalten werden.

Ein typisches Beispiel hierzu ist das HEAD-END der JUPITER-Anlage (Kap. 5.5.1).

Im Prinzip verbrennt man wie folgt:

Zuerst wird eine saubere Schüttung von SM-Kernen (BISO) bzw. SM-Partikeln (TRISO) eingebracht. (Bei kleinen, gut beheizbaren Laborverbrennungsöfen kann darauf verzichtet werden (etwa  $D_{\text{WSR}} < 100 \text{ mm}$ )). Die Größe des Schüttungsvolumens ist anlagenspezifisch. Danach wird der Brennraum aufgeheizt. Nach Erreichen der Zündtemperatur des Wirbelgutes erfolgt unter stetiger Zufuhr von  $\text{O}_2$  und  $\text{CO}_2$  in den Anströmboden das Auffüllen des Reaktors mit Wirbelgut auf die dem Zielumsatz entsprechende expandierte Wirbelschichthöhe ( $H_{\text{EXP}}$ ).  $H_{\text{EXP}}$  muß vorher ermittelt werden. Der Wert kann nach bekannten Formeln aus der Wirbelschichttechnik [40,41,42,43] berechnet werden. Zu besseren Ergebnissen führt eine experimentelle Ermittlung von  $H_{\text{EXP}}$  in einem (1:1) Glas- oder Plexiglasmodell, in dem mit Originalmaterial in einem Wirbelversuch  $H_{\text{EXP}}$  gemessen wird. Aus  $H_{\text{EXP}}$  folgt außerdem auch die Dimensionierung der Wandkühlung und für elektrische beheizte Öfen die zu beheizende Wandhöhe des Brennraumes.

Ein kontinuierlicher Ersatz des durch Verbrennen umgesetzten Kohlenstoffes durch Zudosieren von Wirbelgut aus dem Dosierbunker hält die Wirbelschicht während der Verbrennung im Reaktor auf konstanter Höhe ( $= H_{\text{EXP}}$ ). Die SM-Partikeln des eingebrachten Wirbelgutes sinken nach unten und erneuern stetig die als Anströmboden wirkende Oberfläche der Partikelschüttung im Boden des Reaktors.

Der konusförmige Boden des Reaktors wirkt als  $O_2$ -reiche Reaktionszone. In ihr erfahren die SM-Partikeln eine mehrstündige Verweilzeit, so daß eine nahezu C-freie SM-Asche abgezogen werden kann. Der Abzug erfolgt diskontinuierlich durch z.B. Schleusschieber oder Zellrad-schleusen in eine pneumatische Förderstrecke. Ihr Austritt mündet im Zulauf eines beheizten Nebenwirbelschichtreaktors oder in einem Zwischenbunker. Im Nebenwirbelschichtreaktor erfolgt eine Nachverbrennung evtl. noch vorhandener C-Reste. Die Nachverbrennung sichert nicht nur ein C-freies Produkt für den nachfolgenden Auflöserschritt, sondern ermöglicht erst eine quantitative SM-Bilanzierung innerhalb der Verbrennungsanlage.

2. Wirbelschichtverbrennung mit höheren Gasgeschwindigkeiten  $\{0,9 \text{ ms}^{-1} < v < 1,7 \text{ ms}^{-1}\}$ . Diese Verbrennungsweise wird in Anlagen mit mittleren bis hohen spezifischen Durchsätzen bevorzugt. Die Brennelemente werden auf ein Durchschnittskorn zwischen  $\{1500 \text{ } \mu\text{m} > d_p > 2700 \text{ } \mu\text{m}\}$  zerkleinert. In den Verbrennungsräumen herrscht ein leichter Überdruck im Bereich von  $\{0,2 \text{ bar} < p_{\text{Ü}} < 0,4 \text{ bar}\}$ . Auch hier benötigt man eine Startschüttung. Da bei diesem Gekörn und der eingestellten Gasgeschwindigkeit sämtliches Inventar des Brennraumes verwirbelt wird, läßt sich hier nur ein diskontinuierlicher Betrieb durchführen. Zur Entnahme des SM-Produktes muß nämlich die Gasgeschwindigkeit herabgesetzt werden, damit die Partikeln sedimentieren, vor der Entnahme muß der Ofen in einer Art Nachverbrennungsphase für Graphitreste betrieben werden. Diese Betriebsweise wird in der Pilotanlage der GAC in San Diego bevorzugt. Es wurde auch ein Ausblasen des Gesamtinventars diskutiert, somit sollte dann über einen Zyklon das SM-Produkt außerhalb des Reaktors gewonnen werden. Wegen des erhöhten Gasbedarfes und der doch nicht zyklonierbaren SM-Fraktion (bedingt durch Bruchanteil) scheidet diese Methode aus.

Beide vorgestellte Verfahrensweisen haben ihre Brauchbarkeit

nachgewiesen.

Während beim ersten Verfahren ein kontinuierlicher Verbrennungsbetrieb (Partikel werden in Intervallen, z.B. stündlich abgezogen) möglich ist, müssen im zweiten Fall die Betriebsparameter zum Abzug der SM-Asche geändert werden.

Eine endgültige Entscheidung über die bessere Methode kann erst nach längerer praktischer Bewährung im heißen Einsatz gefällt werden.

#### 5.1.2.2 Wirbelschichtverbrennung für das Einpartikel-Brennstoffsystem mit $\text{UO}_2$ - bzw. $\text{UC}_2$ -Kernen

Die Verbrennung von Brennelementen dieses Typs wird dadurch erschwert, daß die SM-Kerne ( $\text{UO}_2$  oder  $\text{UC}_2$ ) beim Reaktionsumsatz zu  $\text{U}_3\text{O}_8$ , einem sehr feinen Staub, zerfallen können. Die für die Aufarbeitung von Th/U-Mischoxidpartikeln bewährte Betriebsweise läßt sich deshalb nicht ohne weiteres übernehmen.

Intensivere Untersuchungen zur HEAD-END-Behandlung für diesen Partikeltyp wurden erst im Jahre 1980 aufgenommen. Als Startschüttung eignen sich TRISO-beschichtete Kerne oder  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Granulat. In Erwägung gezogen wird außerdem SiC-Hüllbruch.

Zur Zeit ist bereits absehbar, daß niedrige Gasgeschwindigkeiten und sehr hohe Verbrennungsräume ( $D_{\text{WSR}}:H_{\text{WSR}}$  bis 1:20) Vorteile bieten. Das bedeutet, bei Anlagen mit einem C-Umsatz von ca. 100 kg/h ergibt sich  $H_{\text{WSR}}$  zu ca. 8 - 20 m (evtl. mehr). Derartig hohe Wirbelschichtreaktoren weisen andererseits den Vorteil auf, brennrauminterne Staubabscheide- und Rückführungssysteme einsetzen zu können. Wegen eines evtl. hohen SM-Austrages müssen bei brennraumexternen Systemen Staubabscheide- und -rückführungssysteme neu konzipiert und ausgelegt werden. Evtl. müssen zum SM-Abzug geeignete Austragehilfen entwickelt werden.

Eine entscheidende Frage ist die bei der Verbrennung auftretende Verflüchtigung einiger Spaltproduktelemente, wie beispielsweise Cs, Ru, Mo und Te. Bei hochgesinterten und intakten Mischoxidpartikeln ist der in das Abgas übertretende Anteil sehr gering

und daher beherrschbar. Weniger überschaubar ist bislang die Sachlage bei reinen  $\text{UO}_2$ - und  $\text{UC}_2$ -Partikeln. Belastbare Auskünfte sind nur aus Versuchen mit echtem abgebrannten Material zu erlangen. Entsprechende Experimente sind geplant und werden in Kapitel 5.5.5 kurz beschrieben.

#### 5.1.2.3 Wirbelschichtverbrennung für das Zweipartikel-Brennstoffsystem (FEED-BREED-System)

Auch hierbei kennt man die beiden Betriebsweisen mit niedrigen und höheren Gasgeschwindigkeiten (analog zu Kap. 5.1.2.1):

1. Verbrennung mit niedrigen Gasgeschwindigkeiten  $\{0,3 \text{ ms}^{-1} < v < 0,7 \text{ ms}^{-1}\}$ .

Durch die gegenüber dem Mischoxid-Einpartikel-System geänderten Dimensionen der Partikel bedingt, treten bei Verbrennung des Mahlgutes von Brennelementen des FEED-BREED-Systems die FEED-Partikeln in die Verbrennungswirbelschicht über; die BREED-Partikeln dagegen sedimentieren in die Anströmzone des Reaktors. Ihr Abzug während des stationären Betriebes erfolgt ebenfalls stündlich (Verbrennungsanlage 100 kg C/h). Die Betriebsweise des Wirbelschichtreaktors weicht von der in 5.1.2.1 (1. Fall) beschriebenen insofern ab, als der C-Umsatz innerhalb von ca. 5 Stunden bei entsprechender Rücknahme der Anströmgeschwindigkeit auf ca. 1/10 des Nennwertes herabgesetzt wird. Nach dem Abzug der sedimentierten FEED-Partikeln wird der Reaktor wieder auf den C-Nennumsatz hochgefahren. Als ausreichende Zeitdauer für den Abzug wird eine Stunde erachtet. Während dieser Abzugsphase bleiben Wirbelschicht und Reaktorwand auf Betriebstemperatur geregelt.

Die beschriebene Betriebsweise läßt einen Restkohlenstoffanteil im SM-Abzug von  $< 0,35 \%$ , bezogen auf den C-Nennumsatz ( $< 4,5 \%$  bezogen auf den SM-Gehalt) erwarten, so daß ein Nebenwirbelschichtreaktor als Nach-

verbrennungsstufe betrieben werden muß. Diese Betriebsweise wurde für die Wirbelschichtreaktoren zum Projekt VENUS (Kap. 5.5.2) vorgeschlagen. Hierdurch wird eine Vorsortierung von BREED-FEED-Material ermöglicht.

2. Verbrennung mit höheren Gasgeschwindigkeiten  
 $\{0,7 \text{ ms}^{-1} < v < 1,7 \text{ ms}^{-1}\}$ :

Es gilt das unter Kap. 5.1.2.1 (2. Fall) Gesagte. Im Gegensatz zu der unter 1 beschriebenen Betriebsweise ist hier keine Vorsortierung der Partikeln möglich.

Zusammenfassend läßt sich festhalten, daß die Wirbelschichtverbrennung von FEED-BREED-beladenen Brennelementen nach zwei Methoden erfolgen kann. Der Verbrennungsbetrieb verläuft bei beiden Methoden diskontinuierlich. Sie unterscheiden sich hauptsächlich darin, daß im 1. Fall eine Vorsortierung der Partikeln möglich ist und im 2. Fall nicht.

## 5.2 Schematische Fließbilder für das Verbrennungs- HEAD-END

Sowohl für das Einpartikelbrennstoffsystem mit  $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$ -Kernen als auch für das Zweipartikelbrennstoffsystem sind Referenzverfahren zum trockenen Teil des HEAD-END's erarbeitet worden. Es wurden Fließbilder entworfen und für einzelne Apparate Vorentwürfe erstellt. Die Konstruktionen und Fließbilder haben z.T. bereits einen sehr hohen Detaillierungsgrad erreicht. Zum Bau einer kalten Prototypanlage reichen die vorhandenen Unterlagen jedoch noch nicht aus. Der erforderliche Aufwand dafür ist überschaubar. Der Entwicklungsstand für Th-HEU-Brennelemente ist verständlicherweise weiter gediehen als dies für die neuerdings favorisierten LEU-Brennelemente der Fall ist.

### 5.2.1 Referenzverfahren für das Einpartikel-Brennstoffsystem mit (Th,U)O<sub>2</sub>-Kernen

Für die HEAD-END-Behandlung dieses Brennstoffsystems sind folgende Arbeitsschritte vorgesehen:

#### 1. BRENNELEMENTZERKLEINERUNG

Entwickelte Apparate für Kugelbrennelemente:

Hammermühle, Backenbrecher, UNIFRAME.

Entwickelte Apparate für Blockbrennelemente:

UNIFRAME, Walzenfräsmaschine.

#### 2. HAUPTVERBRENNUNG

Entwickelte Apparate: Es wurden mehrere Wirbel-

schichtreaktoren bis zu Durchmessern von 490 mm

bereits betrieben, fertige Konstruktion für einen

Wirbelschichtreaktor mit  $D = 550$  mm, C-Umsatz von  
ca. 110 kg C/h, N<sub>2</sub>-gekühlt.

#### 3. SiC-BRECHSTUFE

Entwickelte Apparate: Jet-Grinding, Diamant-  
scheibenmühle, Walzenbrecher.

#### 4. NACHVERBRENNUNG

Entwickelte Apparate: Vorkonstruktionen,

Secondary burner bei General Atomic, San Diego,  
in Erprobung.

#### 5. SiC-HÜLLENBRUCH-ABTRENNUNG

Entwickelte Apparate: Windsichter, Magnet-  
scheider, auch elektrostatisches Verfahren  
vorgeschlagen.

#### 6. ABGASREINIGUNG

Entwickelte Apparate: Gasreinigungsversuchsanlage

bei GAC, Versuchsanlagen für JUPITER: AKUT, KRYOSEP  
Übersicht in [83].

#### 7. ABGASBEHANDLUNG

Entwickelte Apparate: falls CO<sub>2</sub>-Abgas an  
Atmosphäre abgegeben werden kann, keine  
weitere Behandlung erforderlich, sonst  
Fixierung des CO<sub>2</sub> als CaCO<sub>3</sub>.



Für Brennelemente mit BISO-beschichteten Kernen entfallen die Schritte 3 und 5, auf eine Nachverbrennung kann bei großen Anlagen (C-Umsätze  $>50$  kg/h) nicht verzichtet werden.

Für den Transport des Materials zwischen den einzelnen Stationen des HEAD-END's dürfte ein pneumatisches System, wie in [28,163] beschrieben, am günstigsten sein. Für den Transport zwischen BE-Zerkleinerung und Hauptverbrennung wurden Schwingförderer erfolgreich eingesetzt. Ein Vergleich zwischen den einzelnen Fördersystemen steht noch aus.

### 5.2.2 Referenzverfahren für FEED-BREED-Systeme

Die zur HEAD-END-Behandlung eines FEED-BREED-Partikelsystems notwendigen Verfahrensschritte sind in Abbildung 27 schematisch dargestellt:

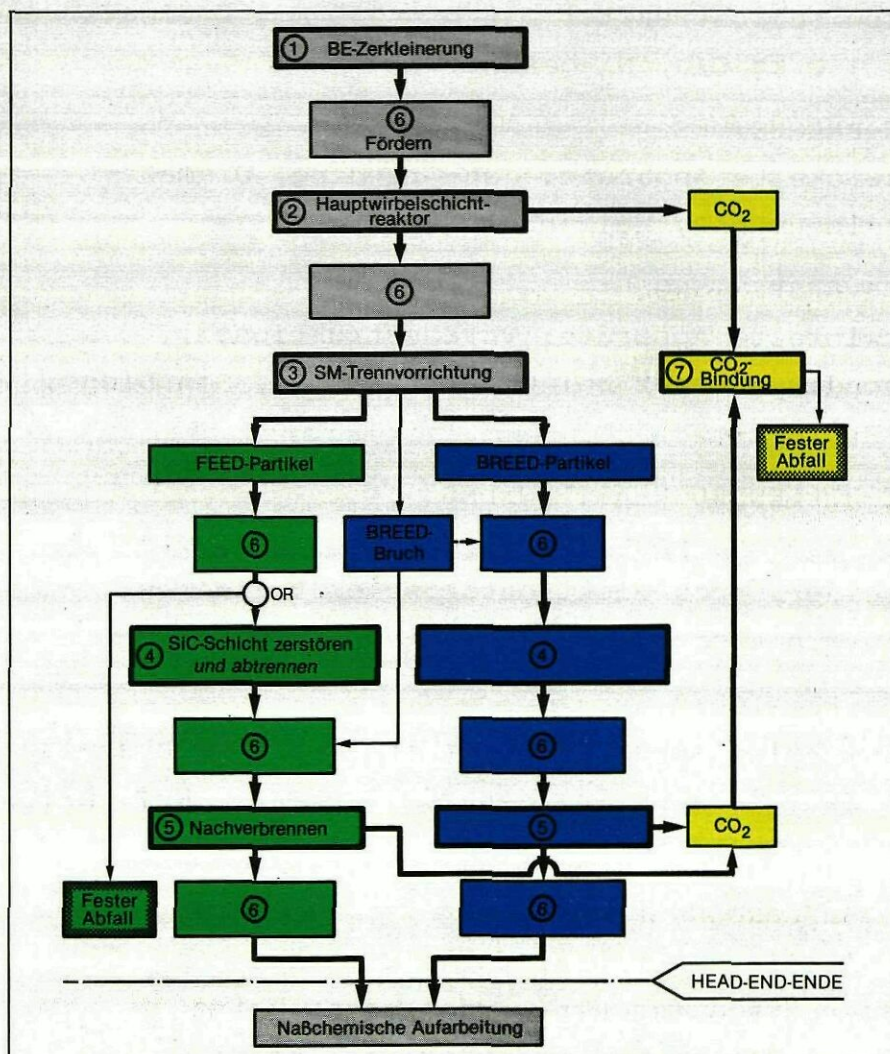


Abb. 27: Vereinfachtes Verfahrensfließbild des HEAD-END's der Wiederaufarbeitung für Brennelemente (BE) aus Hochtemperaturreaktoren



Erläuterungen zu Abbildung 27:

1. BRENNELEMENTZERKLEINERUNG  
(Apparate wie 5.2.1),
2. HAUPTVERBRENNUNG  
(Apparate wie 5.2.1),
3. FEED-BREED-TRENNUNG  
(Apparate: Windsichter, Magnetscheider, Kombination aus Windsichter und Magnetscheider),
4. SiC-BRECHSTUFE  
(Apparate wie 5.2.1),
5. SiC-HÜLLENBRUCH-ABTRENNUNG  
(Apparate wie 5.2.1),
6. NACHVERBRENNUNG  
(Apparate wie 5.2.1),
7. ABGASREINIGUNG  
(Apparate wie 5.2.1),
8. ABGASBEHANDLUNG  
(Apparate wie 5.2.1).

Zum Transport zwischen den einzelnen Stationen gilt das in Kap. 5.2.1 Gesagte.

Literatur: [61,62,84,39,28,29].

### 5.3 Anlagen und Apparate

Zur Entwicklung des Verbrennungs-HEAD-END's sind eine größere Anzahl von Versuchsanlagen, -aufbauten und Einzelapparaten betrieben worden. Besonders hervorzuheben sind die amerikanischen

Anlagen der GAC in San Diego und des ORNL [1,27,115,125,135,136, 155-161,163,164]. In der Bundesrepublik Deutschland sind insbesondere folgende Experimente erwähnenswert:

- der Heiß-Zellen-Versuchsaufbau (1969), [39],
- der Modellwirbelschichtreaktor für das Projekt VENUS (WSR 300), [29], (1977/78), (Abb. 58)
- der WSR 125 [85,65], (1978)
- der WSR 492 [29], (1977-1979), (Abb. 59)
- der WSR 200 [87], (1979, z.Z. Inbetriebnahme), (Abb. 67,68)
- der Head-End-Teil der JUPITER-Anlage (1979/80 kalter Funktionstest), [88],
- das in Vorbereitung befindliche heiße Experiment "AVR-VI" (Planungsbeginn Ende 1980; geplante heiße Inbetriebnahme 1983), (Abb. 65,66).

Neben diesen Versuchseinheiten sind noch mehrere kleine, zum Teil aus Quarzglas hergestellte, Verbrennungsversuchsstände betrieben worden, hierzu sei auf [20-26] verwiesen (z.B. Abb. 66).

#### 5.3.1 Brennelementzerkleinerung

Als Brennelementzerkleinerungsverfahren kommt nur das mechanisch kontrollierte Zerkleinern in Frage (Kap. 2.2.2.1).

Für Kugelbrennelemente können Hammermühle, Backenbrecher und UNIFRAME; für Blockbrennelemente UNIFRAME und Walzenfräsmaschine benutzt werden.

Literatur: [29,39,82,89,90,160].

#### 5.3.2 Hauptverbrennung

##### 5.3.2.1 Berechnungsunterlagen

Berechnungsunterlagen für Gasmengenbedarf, Gasgeschwindigkeit, Startheizung, Kühlung und Dimensionierung des Reaktors liegen

vor und können aus [29,39] entnommen werden. Zur Ermittlung von  $H_{EXP}$  siehe Kap. 5.1.2.1. Konstruktionsunterlagen sind unter der in Kap. 5.5.2 (VENUS) aufgeführten Literatur zu finden.

Anweisungen für die Ermittlung der momentanen und stündlichen Verbrennungsleistung wurden noch nicht veröffentlicht. Deshalb soll im folgenden eine einfache Berechnungsmethode vorgestellt werden. Sie hat den Vorzug, daß während eines Versuches mit einem Taschenrechner die Kalkulation schnell durchgeführt werden kann.

Folgende Größen sind durch einfache Standardmessungen gegeben:

- Volumenmessung am Eingang

$O_2$ -Volumen am Brennraumeintritt	$\dot{Q}_{O_2}$ [Nm <sup>3</sup> /h]
$CO_2$ -Volumen am Brennraumeintritt	$\dot{Q}_{CO_2}$ [Nm <sup>3</sup> /h]

- Konzentrationsmessung am Ausgang

$O_2$ -Gaskonzentration im Abgas	$C_{O_2AG}$ [%]
$CO$ -Gaskonzentration im Abgas	$C_{COAG}$ [%]
$CO_2$ -Gaskonzentration im Abgas	$C_{CO_2AG}$ [%]
Abgas	100 %

- aus der Bilanzierung resultierende Verbrennungsgaszusammensetzung CVG

$\dot{V}_{CO_2}^{VG}$  -  $CO_2$ - Anteil im Verbrennungsgas  
(nur durch  $O_2$ -Zufuhr entstanden)

$\dot{V}_{CO}^{VG}$  -  $CO$ -Anteil im Verbrennungsgas  
(nur durch  $O_2$ -Zufuhr entstanden)

Das Problem der Ermittlung des Kohlenstoffumsatzes liegt einmal in der Unkenntnis des Abgasvolumens und zum anderen darin, daß das durch  $\dot{Q}_{O_2}$  produzierte Gas nicht der gemessenen Abgaszusammensetzung entspricht.

So müssen also

- das Abgasvolumen über eine  $O_2$ -Bilanzierung und



- die nur durch das  $O_2$  hervorgerufene Abgaskonzentration ermittelt werden.

Über eine Bilanzierung ergibt sich die Berechnung des stündlichen Kohlenstoffumsatzes zu

$$\dot{V}_{CO_2 \text{ VG}} \cdot \frac{12}{44} \cdot 1,977 + \dot{V}_{CO \text{ VG}} \cdot \frac{12}{28} \cdot 1,25 = \dot{m}_C \text{ [kg/h]}$$

#### 5.3.2.2 Baugruppen eines Hauptwirbelschichtreaktors

Das Verbrennungsverfahren erfordert einen Hauptwirbelschichtreaktor mit den in Abb. 28 aufgezählten und schematisch verknüpften Baugruppen:

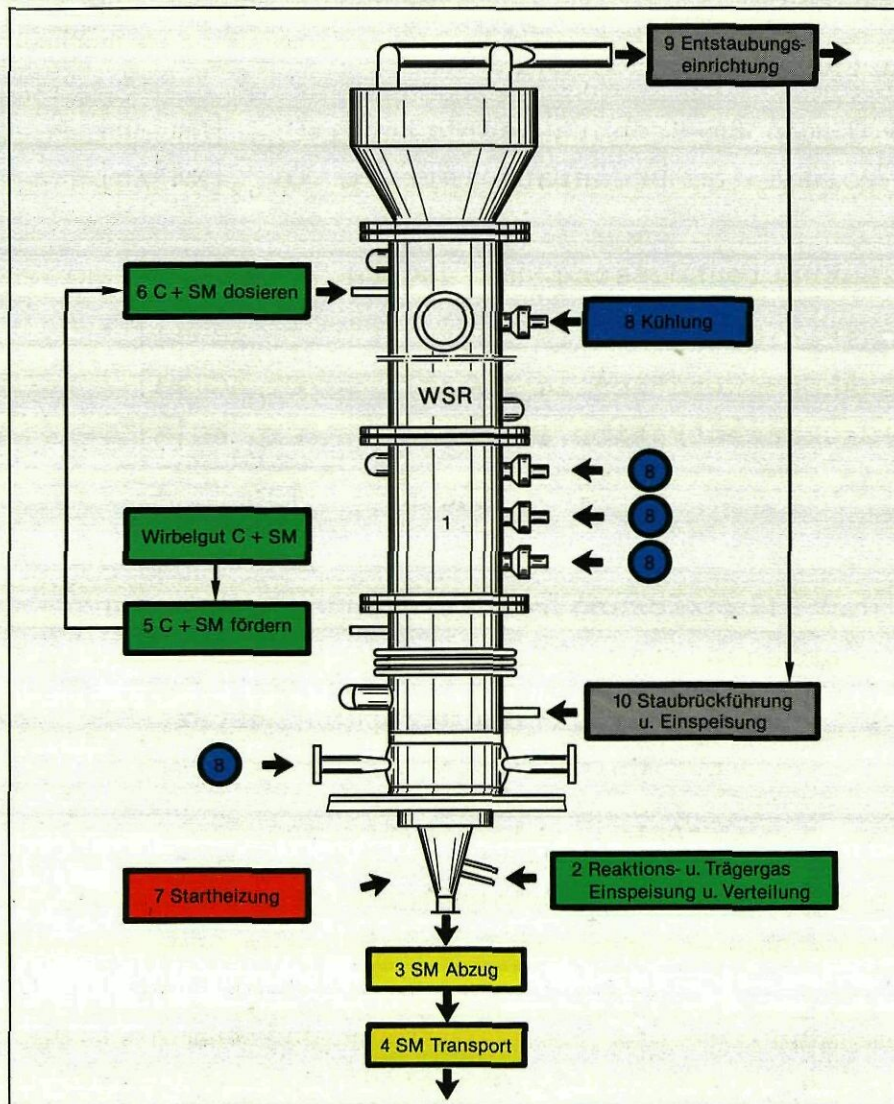


Abb. 28: Baugruppen eines Hauptwirbelschichtreaktors. Der Brennelementgraphit (C) wird durch die Wirbelschichtverbrennung von den Brennstoffpartikeln, die das Schwermetall (SM) enthalten, getrennt (siehe auch Abb. 61).

1. Verbrennungsreaktor,
2. Zufuhr und Verteilung des Reaktions- und Trägergases,
3. Schwermetall-Abzug,
4. Schwermetall-Transport,
5. Wirbelgutförderung,
6. Wirbelgutdosierung,
7. Startheizung,
8. Kühlkreislauf
9. Entstaubungseinrichtung und Einspeisung,
10. Staubrückführung.

Der Wirbelschichtreaktor (1) selbst ist zylindrisch, sein Durchmesser darf aus Kritikalitätsgründen nicht größer als 550 mm sein, daraus ergibt sich eine Bauhöhe von etwa 4,5 m. Bei Normaldruck kann dieser Reaktor 560 Kugelbrennelemente pro Stunde verbrennen; dies entspricht der geforderten Leistung für eine Prototypanlage. In einer Anlage dieser Größe könnten die abgebrannten Brennelemente aus Hochtemperaturreaktoren mit einer installierten Leistung von 5000 MWe aufgearbeitet werden.

Zur Verbrennung muß der Graphit auf Zündtemperatur gebracht werden. Diese Temperatur liegt bei unbestrahltem Graphit bei etwa 660°C. Um die Zündtemperatur zu erreichen, benötigt der Wirbelschichtreaktor eine Startheizung (7). Für das Zweipartikelbrennstoffsystem muß eine Verbrennungsanlage etwa alle 48 Stunden neu gestartet werden. Deswegen ist hier eine möglichst kurze Aufheizzeit nötig. Dies kann, wie auch erprobt, mit einem CO-Brenner geschehen. Der CO-Brenner produziert heißes CO<sub>2</sub>, das, wie auch das Trägergas, die Gasreinigung nicht stört [29].

Es sind aber auch Induktions- [28] und elektrische Widerstandsheizungen möglich [85]. Zur Auslegung dieser Heizsysteme ist die genaue Kenntnis von  $H_{EXP}$  erforderlich (Kap. 5.1.2.1).

Die Einspeisung und Verteilung des Reaktions- und Trägergases (2) erfolgt durch den sogenannten Anströmboden. Schematisiert ist die Ausführung eines solchen Bodens mit Verdrängungskörper in Abb. 29 gezeigt. Näheres hierzu in [29,130].



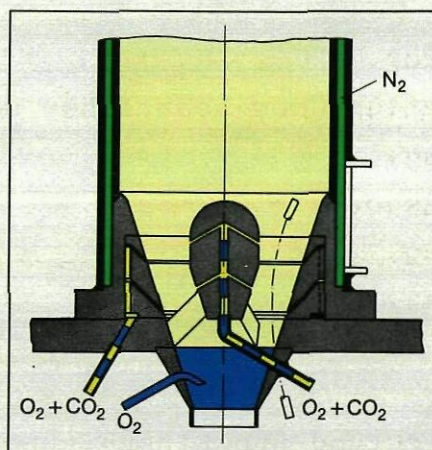


Abb. 29: Schnitt durch den Anströmboden eines Wirbelschichtreaktors. In dem Anströmboden sedimentieren die Schwermetallpartikel; es wird damit eine gleichmäßige Einspeisung des Reaktions- und Trägergases ermöglicht (Verfahren mit niedriger Gasgeschwindigkeit).

Zur Verbrennung wird reiner Sauerstoff ( $O_2$ ) eingesetzt. Da die  $O_2$ -Mengen zum Wirbeln des Verbrennungsgutes nicht ausreichen, wird zusätzlich  $CO_2$  dem  $O_2$  beigemischt. Das  $CO_2$  stört die anschließende Gasreinigung nicht, da es ohnehin bei der Verbrennung als Reaktionspunkt entsteht.

Der Abzug (3) der Partikel erfolgt über Schleusen, der Transport (4) zu den folgenden Arbeitsschritten wird pneumatisch durchgeführt.

Wird dem Graphit der nötige Sauerstoff zugeführt, so können Temperaturen weit über  $1000^{\circ}C$  entstehen. Zur Vermeidung von hohen Temperaturen muß die nicht zur Verbrennung notwendige Wärme abgeführt werden. Hierfür ist eine Außenwand-Kühlung (8) nötig. Aus Sicherheitsgründen ist Stickstoff ( $N_2$ ) als Kühlmedium vorgesehen, einmal aus Kritikalitätsgründen wegen des Spaltstoffinventars Uran (U-233, U-235) und zum anderen, um so ständig die Dichtigkeit der Gesamtanlage kontrollieren zu können. Diese Kontrolle ist durch eine laufende Messung des  $N_2$ -Anteils im Aufstellungsraum des Wirbelschichtreaktors und im Abgasstrang gegeben; da im Kühlsystem ein höherer Druck als im Aufstellungsraum und im Brennraum herrscht, können Undichtigkeiten sofort erkannt werden.



Bei Brennbetrieb muß mit einem Staubaustrag von mehr als 40 % des Gesamtinventars gerechnet werden. Der Staub kann in sogenannten Fliehkraftentstaubern (9) abgeschieden und anschließend in den Ofen zurückgefördert werden. Für diese Aufgabe wurde im Versuchsbetrieb eine Reihenschaltung von einem Zyklon und einem Drehstromentstauber erfolgreich eingesetzt. Man hofft, daß zukünftig für diese Aufgabe allein Zyklone genügen [29].

Außerdem sind rückblasbare Filterkerzen und Kombinationen aus Filterkerzen und Zyklonen möglich und erfolgreich getestet worden [28,59].

Der abgeschiedene Feinstaub sollte in den Verbrennungsraum zurück transportiert werden. Für diesen Förderprozeß eignet sich nur ein pneumatisches Verfahren (Flugstaub, Dünnstrom). Die Einspeisung des abgetrennten Feinstaubes kann am Boden des Reaktors (Unterbetteinspeisung) oder im mittleren bis oberen Bereich des Brennraumes (Oberbetteinspeisung) erfolgen. Für die Unterbetteinspeisung spricht eine schnellere und bessere Verbrennung des Staubes, nachteilig ist die Kompensation des Druckverlustes zwischen Brennraum und Staubzwischenbehälter. Für die Oberbetteinspeisung spricht eine einfachere Rückführung des Staubes, praktisch nur auf Schwerkraft basierend, besonders nachteilig aber ist hierbei das Brennverhalten des Gesamtreaktors [28,59,118]. Die Unterbetteinspeisung dürfte trotz des bekannten Nachteils der Differenzdruckkompensation insgesamt ein besseres Gesamtergebnis liefern, da mit ihr am ehesten ein Anwachsen des Staubinventars zu vermeiden ist.

Die Wiedereinspeisung des ausgetragenen Feinstaubes erweist sich für die Verbrennung aus Stabilitätsgründen als besonders vorteilhaft. Außerdem wird damit auch eine Wiedergewinnung des geringen Anteils von mitausgetragenen Uran- und Thoriumstaub erleichtert. Geschlossene Staubabscheide- und Transportsysteme sind auch an der in Abb. 59 gezeigten Anlage untersucht worden.

Literatur: [28,61,65,94,109,110,115,119,129,130,134,135,136,155,156,159].

Instrumentierung eines WSR: [165].

### 5.3.3 FEED-BREED-Trennung und SiC-Brechstufe

Bei der Verbrennung von TRISO-Partikeln im Hauptwirbelschichtreaktor kommt die Reaktion an der intakten SiC-Schicht zum Erliegen, da SiC gegen Sauerstoff bei den vorliegenden Temperaturen resistent ist. Um die unter der SiC-Schale liegende PyC-Pufferschicht ebenfalls abbrennen zu können, bedarf es zuvor eines mechanischen Aufbrechens der SiC-Hüllen. Es schließt sich eine Nachverbrennung in einem kleiner dimensionierten Wirbelschichtreaktor (Secondary Burner) an. Falls ein Verbrennungsverfahren mit niedrigen Gasgeschwindigkeiten gewählt wird, ist eine Vorsortierung von FEED- und BREED-Material gegeben.

Prinzipiell wird folgendermaßen verfahren: Der Thoriumabzug (BREED) besteht im Idealfall nur aus SiC-beschichteten Kernen und geringen Graphitresten. Er wird in einem Windsichtverfahren von eventuell vorhandenen Verunreinigungen getrennt. Für das Aufbrechen der SiC-Schicht eignet sich ein speziell entwickeltes Verfahren, das sogenannte JET-GRINDING [124] oder ein Mahlverfahren [28].

Beim JET-GRINDING werden die Partikel in einem Gasstrahl beschleunigt. Der Strahl ist auf eine feste Platte gerichtet, auf die die Partikel prallen; dabei platzen die SiC-Schichten ab. Die Trennung des Hüllbruches von den noch mit der Kohlenstoffschicht behafteten Kernen kann z.B. in einem Windsichter durchgeführt werden. Zur Abtrennung der inneren Kohlenstoffschicht werden die Partikel in einen Nachverbrennungsreaktor transportiert.

Die Behandlung des Uranabzuges gestaltet sich etwas aufwendiger, da dieser Abzug ein Gemisch aus Uran-Partikeln mit intakter SiC-Schicht, Uran- und Thoriumkernen, Kernbruch beider Partikelsorten, SiC-Hüllenbruch und Restgraphit ist. Man hofft, daß hier die Uran- und Thoriumkerntrennung genau wie für den Thoriumabzug in Windsichtern durchführbar sein wird. Falls dies mißlingen sollte, müssen aufwendigere Verfahren, wie z.B. eine Kombination von Windsichtern und Magnetscheidern eingesetzt werden [8], Abb. 30 und Abb. 69.



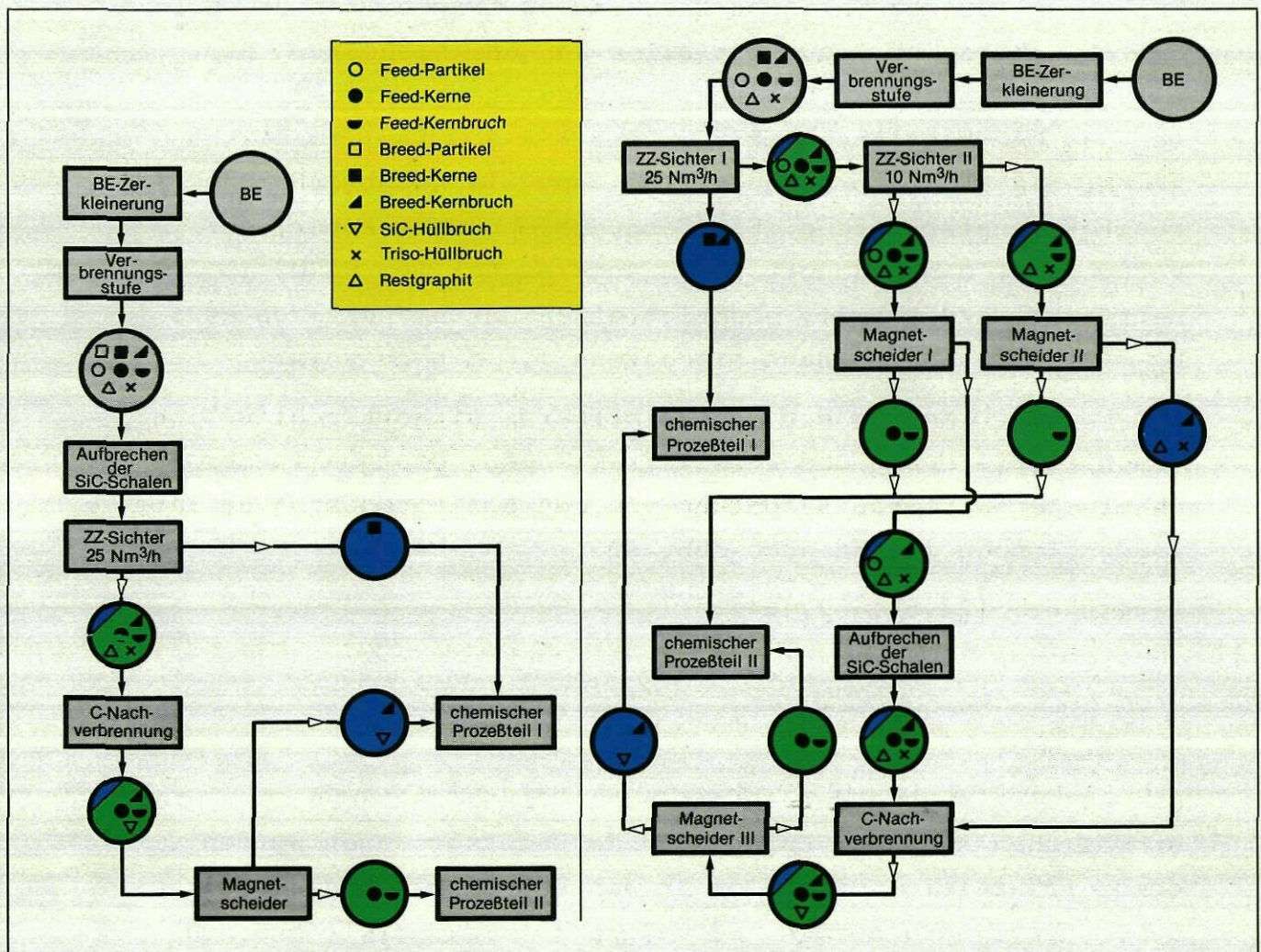


Abb. 30: Alternative Verfahren zur Trennung unterschiedlicher Partikelsorten; links: Trennverfahren für ein TRISO-TRISO-Brennstoffsystem, rechts: Trennverfahren für ein TRISO-BISO-Brennstoffsystem

Literatur: [8, 28, 59, 105, 106, 114, 124, 127, 132, 143, 144, 145, 146, 152, 153, 154, 161].

#### 5.3.4 Nachverbrennung

Die Nachverbrennung erfolgt zweckmäßigerweise ebenfalls in der Wirbelschicht, verfahrenstechnisch wird sie aber anders als im Hauptwirbelschichtreaktor durchgeführt. Einmal ist wegen des geringen C-Anteils auch während des Normalbetriebs mit einem geringen O<sub>2</sub>-Anteil im Abgas zu rechnen, zum anderen ist für die



FEED-Fraktion der Tatsache Rechnung zu tragen, daß die  $\text{UO}_2$ - bzw.  $\text{UC}_2$ -Kerne zu Staub zerfallen können (siehe auch Kap. 5.1.2.2). Ein großer Nachverbrennungsreaktor wird z.Z. nur von der GAC betrieben [28,59]; der WSR 200 [87] im ICT kann sowohl als Nachverbrennungs- wie auch als Hauptverbrennungsreaktor genutzt werden. Ein Nachverbrennungsreaktor, der im Verbund mit einem Hauptverbrennungsreaktor Typ VENUS ( $D_R = 550$  mm) betrieben werden soll, benötigt einen Durchmesser von etwa  $D_R = 200$  mm und muß dann mindestens 1,6 m hoch sein.

Die Nachverbrennung der Brennstoffkerne sichert schließlich graphitfreie Uran- und Thoriumfraktionen, die nun in der chemischen Wiederaufarbeitung von den Spaltprodukten befreit werden können (siehe auch Abb. 62).

Literatur: [28,59,157,164].

### 5.3.5 Abgasbehandlung

Die Abgasreinigung der anfallenden Ofenabgase erfordert einen erheblichen Aufwand. Entsprechende Untersuchungen wurden schon frühzeitig, vor allem in den USA im Oak Ridge National Laboratory, aufgenommen. Besondere Aufmerksamkeit muß den sogenannten halbflüchtigen Spaltproduktelementen gewidmet werden. Dazu zählen insbesondere: Cs, Ru, Mo, I, Se, Te. Ihr Gehalt im Abgas zeigt verständlicherweise eine starke Abhängigkeit von der herrschenden Abgastemperatur [92]. In diesem Themenkomplex sei auf folgende Literaturstellen verwiesen [93,94,95]; dort wird über durchgeführte Heißzellenexperimente berichtet.

Die Kontamination der Ofenabgase mit den obengenannten "halbflüchtigen" Spaltprodukten ist eine Funktion der Verbrennungs- und Abgastemperaturen. Je höher die Verbrennungstemperatur, desto größer sind die in das Abgas freigesetzten Mengen. In Abhängigkeit der herrschenden Abgastemperaturen erfolgt eine Desublimation bzw. Abscheidung an den Leitungen, Filtern etc. in der Abgasstrecke. Dieser Effekt kann zu erheblichen Strahlenschutzproblemen beim Betrieb der Anlagen führen.

Kühlt man den Abgasstrom ausreichend stark ab vor dem Passieren der Filter, so erreicht man eine wirkungsvolle Dekontamination.

Die kritische sichere Auslegung der Anlagenkomponenten erfolgt im Hinblick auf eine Wiederaufarbeitung von Brennelementen mit Brennstoff

- des (U,Th)O<sub>2</sub>-Mischpartikelsystems,
- des (UC<sub>2</sub>,ThO<sub>2</sub>)-feed-breed-Systems der U-235-Linie und
- des (UC<sub>2</sub>,ThO<sub>2</sub>)-feed-breed-Systems der U-233-Linie.

Die Modellrechnungen [102] für den Hauptwirbelschichtreaktor zeigen, daß für eine wirtschaftlich und technisch interessante Anlage nur Reaktordurchmesser in Betracht kommen, die den Maximalwert kritisch sicherer Anordnungen übersteigen. In diesem Fall bietet sich als einzig gangbarer Weg an, die nukleare Sicherheit durch einen Betrieb mit strikter Massenbeschränkung zu gewährleisten.

Für den luft- oder stickstoffgekühlten Prototyp-Reaktor mit 55 cm Reaktordurchmesser ist ein bezüglich der Kritikalität sicherer Betrieb im 48 h-Zyklus möglich; dabei reicht sich die FEED-Fraktion auf max. etwa 50 kg kurz vor dem Abzug aus dem Wirbelschichtreaktor an.

Die Rechnungen basieren auf der sehr konservativen Annahme einer Entmischung von Schwermetall und Graphit, mit dem Graphit als beidseitig axialem Reflektor.

Die Multiplikationsfaktoren errechnen sich bei einem zulässigen Spaltstoffinventar von ca. 100 kg U-235 bzw. U-233 für jeden denkbaren Störfall zu

$$k_{\text{eff}} < 0,75$$

Literatur: [101,102,131,168,169].

#### 5.4.2 Leistungssteigerung

Unter der Bedingung, daß die Wirbelschichtreaktoren aus Kritikalitätsgründen keinen größeren Durchmesser als  $D_{\text{WSR}} = 550 \text{ mm}$  haben dürfen und der Verbrennungsbetrieb im Normaldruck abläuft, müssen für eine Wiederaufarbeitungsanlagen mit einer Ent-

Experimentelle Messungen der  $^{137}\text{Cs}$ -Radioaktivität erbrachten bei einer Filtertemperatur von  $300^{\circ}\text{C}$  Dekontaminationsfaktoren von  $10^6$ , während der entsprechende Wert bei  $500^{\circ}\text{C}$  nur noch  $10^2$  betrug.

Abgastemp. ( $^{\circ}\text{C}$ )	$\mu\text{C}/\text{m}^3$
100	$1,3 \times 10^{-11}$
285	$8,1 \times 10^{-11}$
500	$8,1 \times 10^{-8}$

Die nach einer sorgfältigen Filterung noch durch die im Abgas vorhandenen radioaktiven Edelgase (vor allem Kr-85) errechneten radiologischen Strahlenbelastungen sind in [93,96] beschrieben.

Heute ist davon auszugehen, daß die radioaktiven Komponenten Caesium, Jod, Tritium, Schwefel, Chlor, Radon und Krypton abzutrennen sind, so daß sie einer sicheren Lagerung zugeführt werden können [98]. Verfahren zur Abgasreinigung befinden sich an mehreren Stellen in der Entwicklung. Zum Stand der Arbeiten sei auf [97,98,99,100] verwiesen. Die Veröffentlichungen [99] und [100] befassen sich mit der Behandlung flüchtiger Radionuklide, in [97] und [98] sind auch die Verfahren AKUT und KRYOSEP beschrieben. In [67] wird die besondere Problematik der C-14 Ableitung diskutiert.

Literatur: [93,94,95,97,98,99,100,67].

#### 5.4 Einzeluntersuchungen, Einzelprobleme

##### 5.4.1 Kritikalitätsrechnung

Hierzu sind einige Studien angefertigt und Rechenprogramme erstellt worden [101,102]. So wurde für das VENUS-Projekt eine Rechnung durchgeführt; die Ergebnisse lassen sich folgendermaßen zusammenfassen:

sorgungskapazität von ca. 35.000 MWe 7 bis 9 Verbrennungseinheiten vom Typ VENUS (siehe Kap. 5.5.2) installiert werden. Eine Verringerung der Anzahl der Verbrennungseinheiten ist nur durch eine Leistungssteigerung der Wirbelschichtreaktoren möglich.

Durch eine Erhöhung des Sauerstoffanteils im Brenngas können die Verbrennungsleistungen gesteigert werden. Um sie dann zwangsläufig eintretende höhere Anströmgeschwindigkeit mit dem daraus resultierenden erhöhten Feinstaubaustrag zu vermeiden, d.h. sie soll gegenüber der Normaldruckverbrennung konstant gehalten werden, muß der Reaktor bei Überdruck betrieben werden. Hierbei sind nur Drücke bis 5 bar möglich. Auf diese Weise läßt sich eine maximale Leistungssteigerung um ungefähr das 3-fache gegenüber der Normaldruckverbrennung erzielen.

Bei einer Leistungssteigerung der Verbrennungsanlage wird zwangsläufig auch mehr Wärme erzeugt, die dann aber nicht, wie bisher, allein über die stickstoffgekühlte Reaktorwand abgeführt werden kann. Daher müssen zusätzlich wärmeabführende Rohre in den Wirbelschichtreaktor eingebaut werden. Eine Untersuchung ergab, daß auf Grund der vorgegebenen Stickstoffkühlung maximal 1700 Kugelbrennelemente pro Stunde bei 5 bar in einem Reaktor mit den beschriebenen Abmessungen verbrannt werden können. Die Überdruckverbrennung ermöglicht zwar grundsätzlich eine Durchsatzsteigerung bei gleichen geometrischen Abmessungen. Andererseits schafft sie zusätzliche Sicherheitsprobleme bei einem Heißzellen-einsatz. Zur Beherrschung von Störfällen bei im Überdruck betriebenen Anlagen müssen zusätzliche technische Vorkehrungen im Hinblick auf eine Verhinderung unkontrollierter Freisetzungen radioaktiver Stäube, Aerosole und Gase getroffen werden. Lit.: [29]

#### 5.4.3 Aufbrechen der SiC-Beschichtung

##### 5.4.3.1 Beschreibung der SiC-beschichteten Brennstoffteilchen

Für die Brennelemente des HTR's wurden mehrere Partikelvarianten vorgeschlagen und erprobt. Das wohl aussichtsreichste Konzept sieht eine Mehrfach-Beschichtung (TRISO-genannt) vor (Abb. 31):

- eine innere Beschichtung aus Kohlenstoff
- eine Zwischenschicht aus Siliziumcarbid (SiC) und
- eine äußere Schicht aus hochdichtem Pyrokohlenstoff.

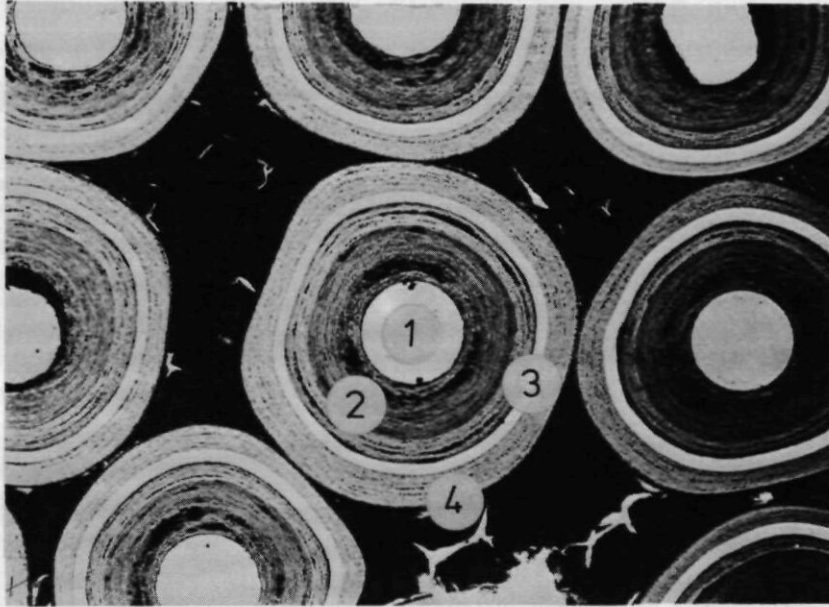


Abb. 31: Schnitt durch TRISO-beschichtete Brennstoffteilchen der Sorte EO 561/567 t (100:1)

- 1 Brennstoffkern
- 2 innere Kohlenstoffbeschichtung
- 3 SiC-Schicht
- 4 äußere Pyrokohlenstoffbeschichtung

Die sog. Coated Particles haben einen Durchmesser von 0,4 - 0,6 mm; ca. 33.000 solcher Brennstoffteilchen befinden sich in einem Kugelbrennelement.

Werden die Hochtemperaturreaktoren im Thorium/Uran-Brennstoffkreislauf betrieben, diskutiert man zwei Varianten der Brennelementbeladung (siehe auch Kap. 1.2):

1. Brennelemente mit nur einer Sorte von Coated Particles, den Mischoxidpartikeln, wobei es sich um beschichtete  $(U,Th)O_2$ -Kerne handelt.
2. Brennelemente mit zwei Sorten von Coated Particles und zwar den
  - FEED-Partikeln, die in ihrem Kern nur Spaltstoff in Form von  $UC_2$  oder  $UO_2$  und den

- BREED-Partikeln, die nur den Brutstoff in Form von  $\text{ThO}_2$ , enthalten.

Die erste Variante ist unter dem Namen Mischoxid-, die zweite unter dem Namen FEED-BREED-Konzept bekannt.

Die SiC-Zwischenschicht dient dem Zweck, die Rückhaltefähigkeit besonders für feste Spaltprodukte weiter zu erhöhen. Da diese SiC-Schicht der Verbrennungsreaktion widersteht, ergeben sich bei der Wiederaufarbeitung Probleme, den Brennstoffkern für die weitere chemische Behandlung freizulegen.

#### 5.4.3.2 Prinzipielle Möglichkeiten zur Zerstörung der SiC-Beschichtung

##### 1. Thermisches Zersetzen:

Aufheizen der Partikeln auf über  $2200^\circ\text{C}$ ; SiC ist bis zu diesen Temperaturen stabil.

##### 2. Aufschluß durch Salzschnmelzen:

Unter Verwendung eines Gemisches aus Natronlauge und Natriumnitrat gelingt ein chemischer Aufschluß [104].

##### 3. Thermoschockbehandlung:

Zerstören der SiC-Schicht durch schnelles Aufheizen der Partikeln auf ca.  $2600^\circ\text{C}$  und nachfolgendes Abkühlen [3].

##### 4. Thermisches Chlorieren:

Überführen des SiC in  $\text{SiCl}_4$  durch Chlorieren bei Temperaturen von  $1000^\circ\text{C}$  und nachfolgendes Absublimieren [3].

##### 5. Mechanisches Zerstören:

Aufbrechen der Beschichtungen durch mechanische Beanspruchungen.

Bisher sind folgende mechanische Verfahren mit unterschiedlichem Erfolg erprobt worden:

- 5.1 Walzenbrecher [90]
- 5.2 Diamantscheibenmühle [25]
- 5.3 Düsenstrahlmühle [106]
- 5.4 Partikelstrahlmühle [105]

#### 5.4.3.3 Beschreibung der einzelnen Verfahren und Anlagen

Im folgenden wird kurz auf die Verfahren eingegangen, mit denen gewisse Erfolge erzielt werden konnten:

##### Thermoschockbehandlung

Die Thermoschockbehandlung von beschichteten Teilchen ist bei einfachen Pyrokohlenstoffhüllen zu deren Zerstörung gut anwendbar. Die Beschichtungen der wärmebehandelten Teilchen werden dabei so weit beschädigt, daß ein chemischer Angriff auf den Kern möglich wird. Es empfiehlt sich, diesen Prozeß an den abgebrannten Brennstoffeinsätzen direkt durchzuführen. Der Graphiteinsatz wird möglichst rasch (10 bis 20 min) in einem induktiv beheizten Ofen auf 2600 bis 2800°C erhitzt. Nach Erkalten wird er in die eigentliche Aufarbeitungsanlage gebracht. Die für diese Versuche gebaute Anlage ist eine kombinierte Quarz-Pyrexglas-Apparatur, die es ermöglicht, die Beschichtungen aufzubrechen; um sie anschließend bei 1000°C zu chlorieren.

##### Thermische Chlorierung

Neben der Möglichkeit, durch Überschreiten der thermischen Stabilitätsgrenze die Siliziumkarbidhüllen zu zerlegen, bleibt die Alternative, die SiC-Hüllen durch Umsetzen mit Chlorgas zu zerstören.

Siliciumcarbid reagiert bei Temperaturen über 800°C, vorzugsweise bei etwa 1200°C mit Chlorgas unter Bildung von flüchtigem  $\text{SiCl}_4$ . Schwierigkeiten traten jedoch nach dem Abbrennen der äußeren Pyrokohlenstoffschichten im Sauerstoffstrom auf. Die SiC-Schicht



erleidet dabei eine oberflächliche Oxidation zu  $\text{SiO}_2$ . Diese dünne Oxidschicht schützt vor einem Angriff durch Chlor und verhindert den Reaktionsablauf der Chlorierung.

Wird jedoch die Kohlenstoffhülle mit  $\text{CO}_2$  entsprechend  $\text{CO}_2 + \text{C} \rightleftharpoons 2 \text{CO}$  oxidiert, unterbleibt die Schutzschichtbildung und die Reaktion  $\text{SiC} + 2 \text{Cl}_2 \rightarrow \text{SiCl}_4 + \text{C}$  kann ablaufen. Behandelt man mit Siliziumkarbid beschichtete Teilchen mit einem  $\text{CO}_2$ - $\text{Cl}_2$ -Gemisch, dann läßt sich die Reaktion in einem Zug zu Ende führen. Der Prozeß kann in einer geschlossenen Quarzapparatur ausgeführt werden, ohne daß die Teilchen mehrmals umgefüllt werden müssen. Einen weiteren Vorteil bietet die thermische Chlorierung dadurch, daß der Brennstoffkern, sei es nun ein Oxid oder Karbid der Elemente Uran, Thorium oder Zirkonium, gleichzeitig in Form von Chloriden absublimiert wird. Bei abgebrannten Brennstoffen kommt es beim Sublimieren zu einer Fraktionierung der Chloride der Spaltprodukte, des Urans und des Thoriums. Die Spaltprodukte aus der Gruppe der Seltenerd- und Erdalkalimetalle sind relativ schwer flüchtig und bleiben größtenteils im Probenbehälter. Die flüchtigen Chloride der Spaltprodukte, besonders  $\text{ZrCl}_4$ ,  $\text{NbCl}_5$ ,  $\text{TeCl}_4$  und  $\text{CsCl}$ , werden mit  $\text{UCl}_4$  und  $\text{ThCl}_4$  absublimiert. Die Chloride von Zirkonium Niobium und Uran sind unterhalb  $600^\circ\text{C}$  flüchtig, die Chloride von Cäsium und Thorium dagegen sublimieren bei höheren Temperaturen.

Allgemein bietet die thermische Chlorierung die Möglichkeit, die Brennstoffkerne aus den zerstörten Hüllen zu entfernen und den Brennstoff fast quantitativ zurückzugewinnen. Problematisch bleibt die Werkstofffrage, die für einen technischen Einsatz des Verfahrens bisher ungelöst ist.

#### Der Walzenbrecher (Double-Roll-Crusher)

Die Anlage besteht aus zwei 10 cm breiten, parallel laufenden Walzen mit einem Außendurchmesser von 10 cm. Die eine Walze wird von einem 2 PS-Motor über ein Getriebe angetrieben. Die andere Walze ist über ein Zahnradgetriebe mit der ersten verbunden. Das Gehäuse, sowie die Walzenkörper sind aus C-Stahl AISI 8620 (Oberflächengehärtet RC 61) gefertigt [59].

Der Mahlspalt zwischen den Walzen hat eine Nennweite von 0,43 mm. Von der Größe des Spaltes ist der Verschleiß der Walzen abhängig.

Nach einem Durchsatz von 70 kg  $\text{ThC}_2$ -Partikeln wurde eine Spalterweiterung von 0,05 mm gemessen. Die minimale Mahlspalteinstellung darf nach [91] nicht unter 0,3 mm liegen, damit der Anteil des Feinstaubes und der Materialverschleiß der Walzen nicht zu groß wird.

Zu Beginn des Betriebes stellt man nach [91] den Mahlspalt auf 0,3 mm ein und fährt die Walzenmühle so lange, bis sich der Mahlspalt durch den Verschleiß auf 0,43 mm vergrößert hat. Allerdings werden bei der 0,3 mm-Spaltweite alle Partikelkerne zerstört, während bei der 0,43 mm-Einstellung 75 % der Kerne unzerstört bleiben.

Die Durchsatzleistung wird mit 10 kg/h angegeben. Eine höhere Leistung von 30 kg/h kann durch das Aufstellen mehrerer Walzenmühlen oder durch eine höhere Umdrehungsgeschwindigkeit der Walzen erzielt werden. Letztere Möglichkeit bringt allerdings wieder eine Verfeinerung des Mahlproduktes mit sich.

#### Die Diamantscheibenmühle

Der Aufbau der Diamantscheibenmühle geht aus Abb. 32 hervor.

Als Konstruktionsmaterial wurde rostfreier Stahl verwendet (Werkstoff-Nr. 1.4571). Die Mühle wird von einem Elektromotor (1 PS, 3000 UpM) angetrieben. Der Mahlraum ist gasdicht abgeschlossen. Die Abdichtung zur Antriebswelle besteht aus einer Gleitringdichtung (Paarung Hartmetallkohle) [24]. Auf der Antriebswelle (Rotor) ist eine der beiden Diamantscheiben (Konzentrationsangabe 4,4 Karat/cm<sup>3</sup> Belagvolumen) mit einem Durchmesser von 60 mm fest aufmontiert. Mit der Diamantscheibe dreht sich gleichzeitig eine Flügelschraube, die das Mahlgut in den Mahlspalt drückt. Die Mahlspalteinstellung erfolgt durch Verschieben des zweiten, nicht rotierenden Mahlsteins (Stator) mit Hilfe eines Handrades.

Der Mahlspalt kann erst eingestellt werden, wenn die Diamantscheibenmühle nach einer 1/4-stündigen Laufzeit ihre Betriebstemperatur erreicht hat, denn durch die Temperaturerhöhung dehnt

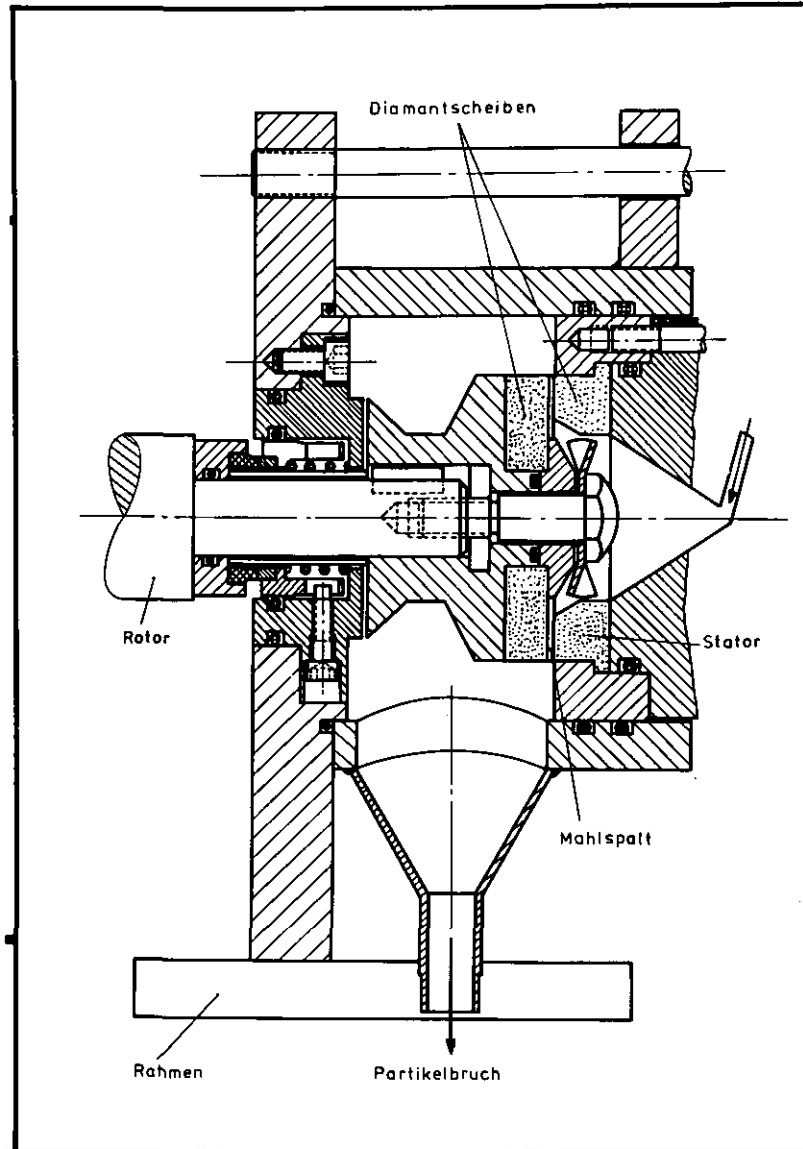


Abb. 32: Diamantscheibenmühle

sich der Trieb, der die Rotordiamantscheibe trägt, etwas aus (max.  $100\ \mu$ ) [162]. Als Nullpunkt wird die Stellung der rotierenden Mahlscheibe bezeichnet, in der sie gerade noch den feststehenden Stein ganz leicht berührt. Zum Einstellen des Nullpunktes schaltet man den Motor ganz kurz ein und wieder aus. Während des Auslaufens des Rotors bis zum Stillstand wird der Mahlspace so weit verringert, bis sich Rotor und Stator leicht berühren (leichtes Schleifgeräusch) Diese Stellung gilt als Ausgangspunkt für die Mahlspaceinstellung.

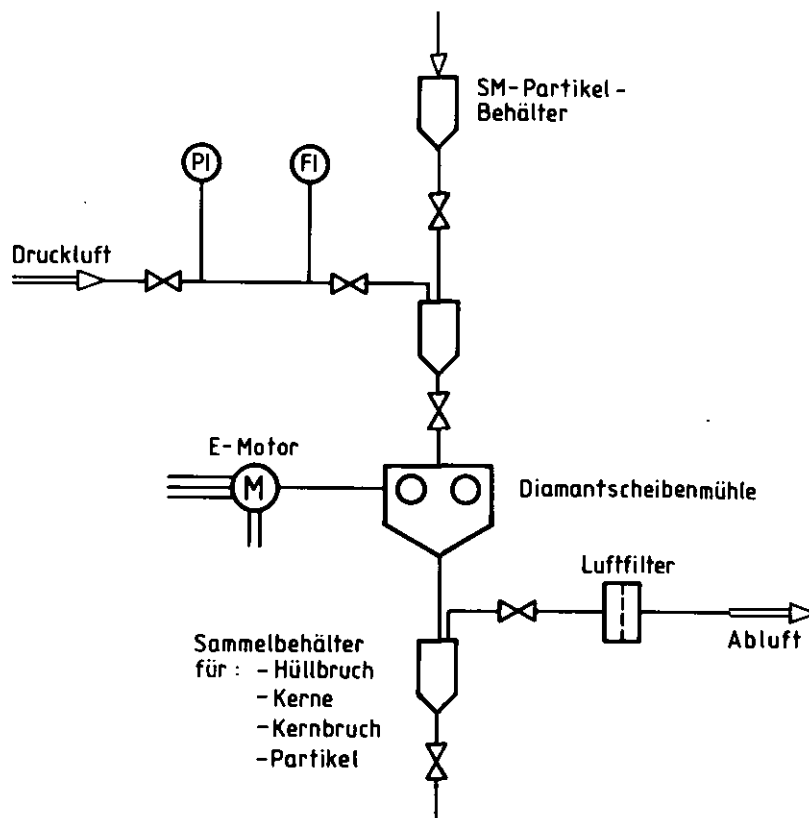


Abb. 33: Apparatefließbild für Versuchsaufbau Diamantscheibenmühle

### Die Düsenstrahlmühle (Jet Grinder)

B. Palmer [106] entwickelte ein Verfahren, bei dem die Partikelbeschichtungen durch einen Düsenstrahl, der in die Wirbelschicht aus TRISO-beschichteten Partikeln gerichtet ist, zerstört werden.

Abbildung 34 zeigt das Prinzip dieses Verfahrens.

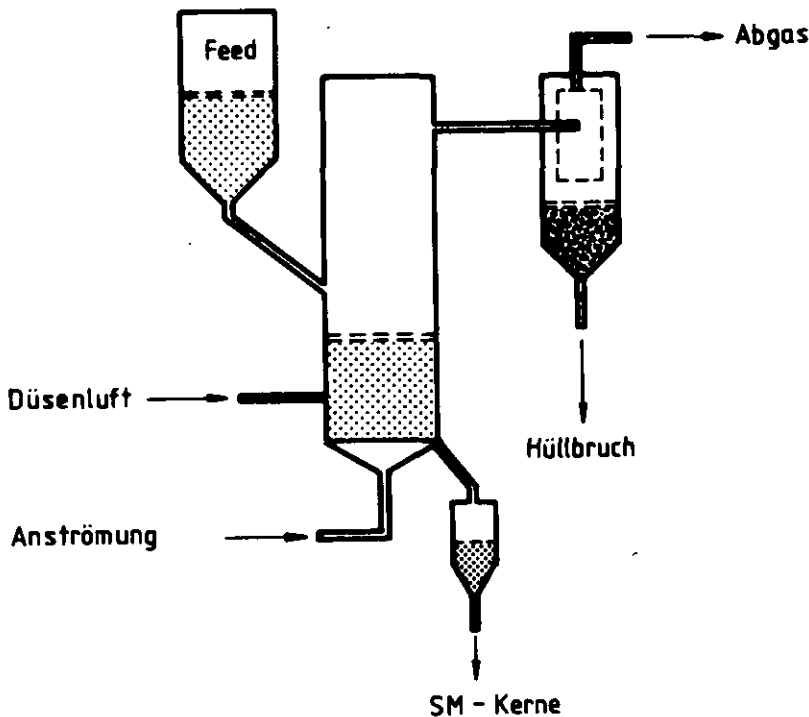


Abb. 34: Verfahrensprinzip des Jet-Grinders

Durch die Düse tritt Luft mit Schallgeschwindigkeit hindurch. Diese hohe Geschwindigkeit ist nach Palmer nötig, um auf der kurzen Entfernung bis zur Prallplatte die Partikel bis auf eine Mindestgeschwindigkeit zu beschleunigen. Als Mindestgeschwindigkeit wird die Geschwindigkeit bezeichnet, die beim Zusammenstoß eines Partikels mit einem anderen Objekt zum Zerschlagen der Beschichtungen führt.

In Laborversuchen wurde gefunden, daß die Partikelbruchrate abhängig ist von

- der Düsengröße,
- dem Luftdruck und
- dem Abstand der Düse von der Prallplatte.

Alle Versuche wurden mit TRISO-beschichteten Brutstoffpartikeln durchgeführt.

Der Vorteil einer Düsenstrahlmühle gegenüber dem Walzenbrecher besteht in der Tatsache, daß das gesamte Hüllmaterial von dem unzerstörten Kern unmittelbar abgetrennt werden kann. Da der Anteil Restgraphit auf der Kernoberfläche sehr klein ist, wird erwartet, daß die Nachverbrennungsstufe überflüssig wird und die SM-Kerne sofort in den Auflöser gefördert werden können.

Die im Verhältnis zu den SM-Kernen leichten TRISO-Beschichtungen werden aus dem Wirbelschacht ausgetragen und über einen Zyklon in einen Sammelbehälter aus der Abluft ausgeschieden.

Die SM-Kerne und unzerstörten Partikeln sammeln sich über dem Anströmboden an und können aus dem Glaszylinder abgezogen werden.

Problematisch bei der Verwendung einer Luftstrahlmühle ist die Erzeugung und Aufrechterhaltung eines Düsenstrahls, der den Partikeln auf dem kurzen Weg vom Düsenaustritt bis zur Prallwand die zum Aufbrechen der Beschichtungen notwendige Geschwindigkeitsenergie verleiht [105]:

#### Die Partikelstrahlmühle

Im Unterschied zu der Strahlmühle werden in der Prallmühle die Partikeln aus dem Vorratsbehälter direkt in die Düsendruckleitung gefördert und hier von dem Trägermedium (Luft) mit hoher Geschwindigkeit in den Mahlraum transportiert, wo die TRISO-Beschichtungen der Partikeln beim Aufprall auf die Prallplatte aufbrechen und den SM-Kern freigegeben (Abb. 35). Der Mahlraum, der auch als Sichtraum ausgelegt ist, wird gleichzeitig von unten angeströmt, so daß bei entsprechendem Luftdurchsatz der Hüllbruch aus dem Sichtrohr nach oben ausgetragen und über einen Zyklon aus dem Abluftstrom abgeschieden werden kann.

Die SM-Kerne und noch unzerstörten Partikeln werden über eine Abflußleitung, die unmittelbar über dem Anströmboden in das Sichtrohr mündet, abgezogen.

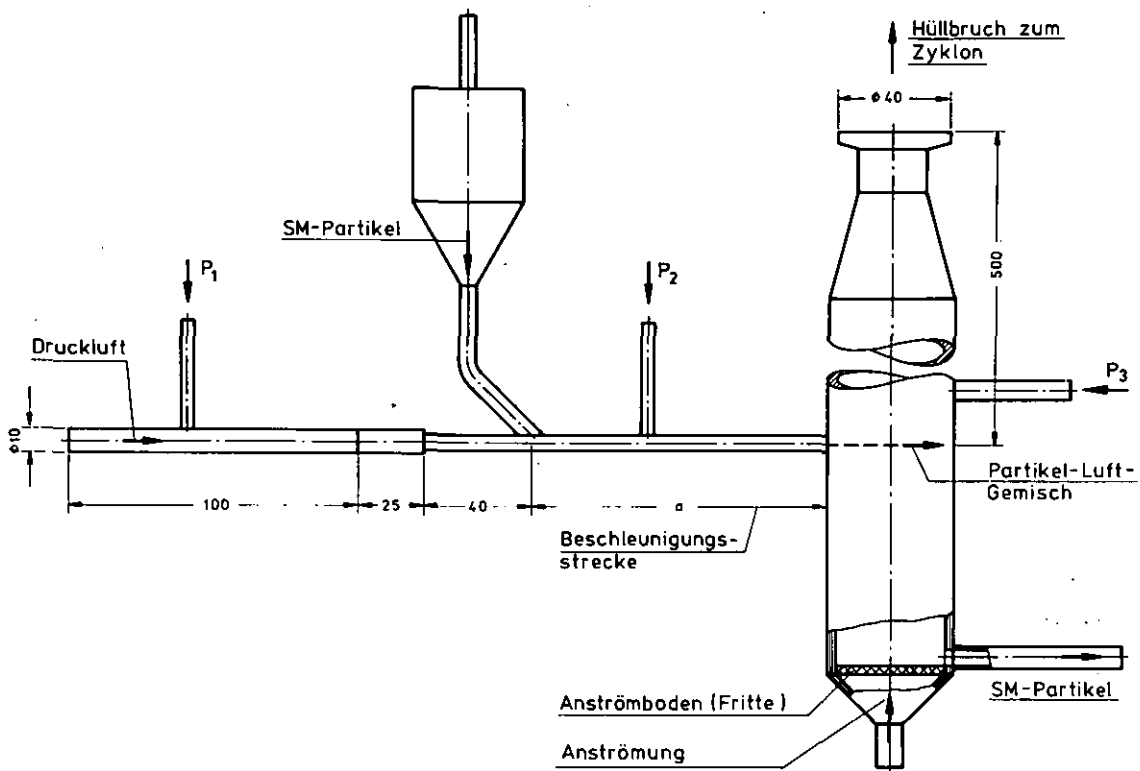


Abb. 35: Partikelstrahlmühle [124]

#### 5.4.3.4 Vor- und Nachteile der beschriebenen Verfahren, Versuch einer Bewertung

Unter Berücksichtigung der heute an einen Prozeß der Wiederaufarbeitung gestellten Sicherheitsanforderungen schienen die thermochemischen Verfahren wie

- thermisches Zersetzen,
- Aufschluß durch Salzsämelzen,
- Thermoschockbehandlung und
- Chlorierung

für die Zerstörung und Beseitigung der SiC-Beschichtung nicht infrage zu kommen, da

die Beherrschung technischer Prozesse, die bei Betriebstemperaturen von  $1000^{\circ}\text{C}$  -  $2000^{\circ}\text{C}$  ablaufen, unter Heißzellen-Bedingungen wegen der Materialprobleme infrage gestellt wird.

Hochtemperaturverfahren im Heißzellenbetrieb erfordern einen hohen Sicherheitsaufwand.

Salzschmelzenaufschlüsse und die Chlorierung erzeugen außerdem schwierig zu konditionierenden radioaktiven Abfall.

Demgegenüber werden von einigen trockenmechanischen Verfahren zum Zerstören der SiC-Beschichtung die Bedingungen, die an einen Betrieb in der Heißen Zelle gestellt werden, wie

- vollautomatische Betriebsweise und Steuerung,
- Einbau von Anlagen, die ohne rotierende Teile arbeiten (Minimierung des Wartungsaufwandes),
- problemloses Auswechseln der Verschleißteile mit Hilfe von Manipulatoren

erfüllt.

Aussichtsreicher dürften trockenmechanische Zerkleinerungsverfahren sein.

Die Versuchsergebnisse unter Einsatz eines Walzenbrechers mit unbestrahlten  $UC_2$ - und  $ThO_2$ -TRISO-Partikeln werden in [166] und [39] beschrieben.

Eine Bewertung zeigt folgendes Ergebnis für den Walzenbrecher: Vorteile:

- hohe Durchsatzleistung (15 - 30 kg/h),
- hohe (100 %) Hüllbruchraten.

Nachteile:

- komplizierter Aufbau der Apparate und dadurch bedingte Probleme beim Ein- und Ausbau der Verschleißteile,
- Mahlspalteinstellung (Berücksichtigung der Mahlspaltverengung beim Anfahren und Erweiterung durch Verschleiß der Mahlwerkzeuge),
- hoher Kernbruch- und Feinstaubanteil,
- Wartungsaufwand,



- Notwendigkeit eines zusätzlichen Verfahrensschrittes zur Trennung von Kernmaterial und Beschichtung.

Die pneumatischen Verfahren:

- Düsenstrahlmühle und
- Partikelstrahlmühlen weisen nach den bisherigen Versuchen folgende Vorteile auf:
- geringer Wartungsaufwand,
- Aufbrechen der Beschichtungen und Trennung von Kernen und Hüllbruch in einem Verfahrensschritt,
- geringer Kernbruch- und Feinstaubanteil,
- einfache Bauweise,
- kontinuierliche Betriebsweise,
- leichte Auswechselbarkeit der Verschleißteile (Düse und Prallplatte).

Schwierigkeiten bereitet die geringere Durchsatzleistung und Steuerung des Düsenstrahles. Die besten Ergebnisse wurden mit der Partikelstrahlmühle erzielt und zwar wurden bei einem Kernbruchanteil von  $< 1 \%$

- |                      |                                                           |
|----------------------|-----------------------------------------------------------|
| - Hüllbruchraten von | 90 % bei $\text{UO}_2$ -/ $\text{UC}_2$ -TRISO-Partikeln, |
|                      | 99 % bei $\text{ThO}_2$ -TRISO,                           |
| - Durchsatzleistung  | 2,4 kg/h,                                                 |
| - Luftverbrauch      | 7 m <sup>3</sup> /h                                       |

ermittelt.

Die pneumatischen Verfahren machen eine Abluftreinigung und Rezyklierung notwendig und arbeiten in einem Düsendruckbereich von 1,5 - 3 ata (Partikelstrahlmühle) bzw. 5 - 10 ata (Düsenstrahlmühle). Wegen der außerordentlich problematischen Einstellung der richtigen Düsenstrahlgeschwindigkeit beim Jet Grinding, dürfte die Partikelstrahlmühle gegenüber der Düsen-

strahlmühle vorzuziehen sein.

Die Auswertung der Ergebnisse aus den Prallversuchen zum Aufbrechen der SiC-Beschichtung bestrahlter  $\text{UO}_2$ -TRISO-Partikeln lassen vermuten, daß ein großer Teil der nach dem Aufprall auf die Prallwand bloßgelegten  $\text{UO}_2$ -Kerne aufgrund der gegenüber unbestrahlten  $\text{UO}_2$ -Kernen wesentlich geringeren Bruchfestigkeit bei nachfolgenden Zusammenstößen mit anderen Partikeln oder Rohrwandungen zu sehr feinkörnigem und schwer zu handhabendem  $\text{UO}_2$ -Kernbruch zerfallen [127].

Eine abschließende Beurteilung ist ohne weitere umfassende Heißzellenversuche mit technisch relevanten Mengen nicht möglich. Insbesondere muß ermittelt werden, mit welchem Aufwand und welcher Trennschärfe sich der fein gemahlene Schwermetallanteil ( $d_K < 100 \mu\text{m}$ ) von dem Hüllbruch trennen läßt.

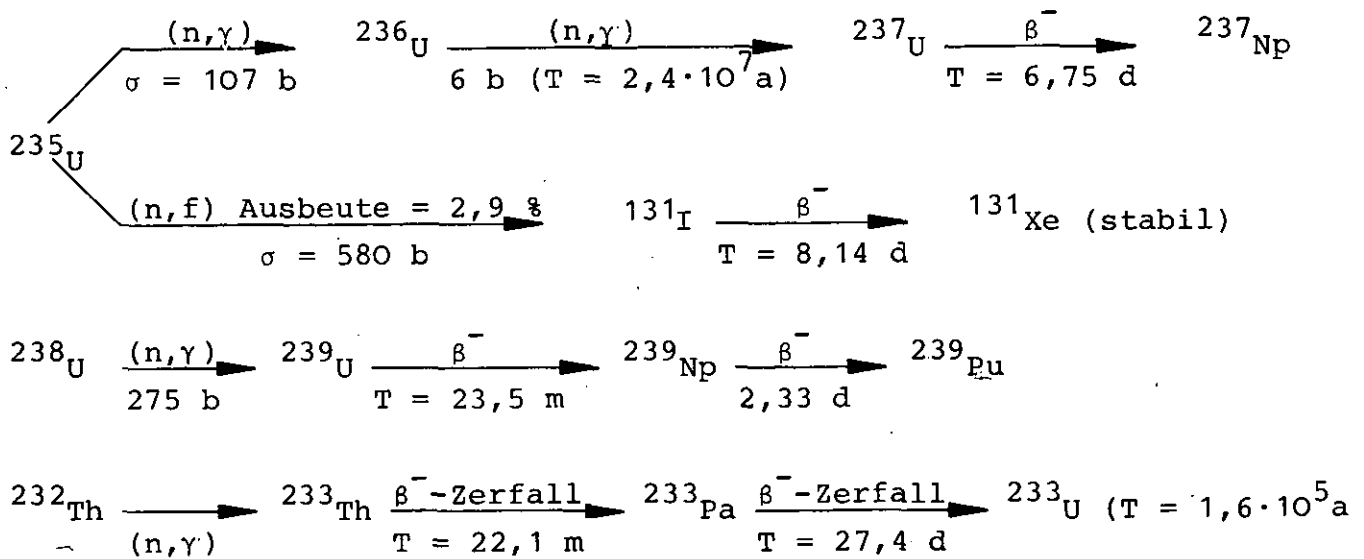
Literatur: [3,20-26,91,105,106,114,124,127,166].

#### 5.4.4 FEED-BREED-Trennung

##### 5.4.4.1 Begründung für die Zweckmäßigkeit der FEED-BREED-Trennung

Beim Einsatz von hochangereichertem Uran führt der Aufbau des parasitär gebildeten Neutronenabsorbers U-236 im Gleichgewichtskreislauf zu einer deutlichen Verschlechterung der Neutronenökonomie. Deshalb sind die Brenn- und Brutstoffe in zwei verschiedenen Partikeltypen getrennt untergebracht. Außerdem kann auf diese Art das U-236 im naßchemischen Teil der Wiederaufarbeitung leichter aus dem Brennstoff entfernt werden.

Das sogenannte FEED-BREED-Brennstoffkonzept ist ein solches Konzept, das die vom erbrüteten U-233 getrennte Führung des eingesetzten U-235 in dem Brennstoffkreislauf vorsieht [142].



Dadurch ergibt sich erstens die Möglichkeit

- das stark mit U-236 verdünnte U-235 aus dem Kreislauf auszuschneiden

und zweitens

- zu verhindern, daß der stets den U-233-Strom begleitende harte  $\gamma$ -Strahler U-232 auch den U-235-Strom kontaminiert und somit auch eine fernbediente Refabrikation des gesamten zu rezyklierenden Urans notwendig macht.

Wegen der hohen angestrebten Abbrände und des Aufbaus von U-236 ist allerdings daran gedacht, das wiedergewonnene U-235 lediglich einmal zu rezyklieren und danach einer Endlagerung zuzuführen.

#### 5.4.4.2 Problematik der FEED-BREED-Trennung

Die Problematik der FEED-BREED-Trennung besteht in der quantitativen Auftrennung des Verbrennungsrückstandes.

Er besteht im Idealfall aus

- FEED-Partikeln,

- BREED-Partikeln und
- Restgraphit.

Die FEED-BREED-Partikeln stellen als Gemisch ein Kornkollektiv gleicher Geometrie dar. Dieses Kornkollektiv setzt sich aus Kugeln zusammen und ist vermischt mit einem Kornkollektiv von Körpern verschiedener Geometrie, dem Restgraphit. Die Formen des Gekörns des zweiten Kollektivs liegen im Bereich gerader und gekrümmter Platten.

Beide Teilkollektive haben als gemeinsames Merkmal deutliche Dichteunterschiede, sowie verschiedene dielektrische und magnetische Eigenschaften. Im Falle des Teilkollektivs der kugelförmigen Partikeln liegen darüber hinaus noch unterschiedliche Partikeldurchmesser mit ihren zugehörigen Durchmesser-Verteilungen vor. Wegen der verwickelten Verhältnisse der Korneigenschaften muß davon ausgegangen werden, daß zur Auftrennung des Verbrennungsproduktes weder ein einstufiges Trennverfahren, noch das Verwenden einer einzigen Trennmethode zur quantitativen Auftrennung führen. Weiterhin gilt die Einschränkung, daß wegen des hohen Spaltstoffanteils des zu trennenden Gemisches mit Rücksicht auf die Verhinderung einer neutronenkritischen Anordnung nur trockene und unter Abschirmung einfach zu handhabende Verfahren in Frage kommen.

Ferner wird von dem Trennverfahren gefordert, daß der Verlust von Spaltstoff und Quervermischung ("FEED-crossover" und "BREED-crossover") unter 1 % gehalten wird.

#### 5.4.4.3 Möglichkeiten der FEED-BREED-Trennung

Bisher wurden zur FEED-BREED-Trennung folgende Verfahren und deren Kombination untereinander untersucht:

- a) Vibrationssiebverfahren [132],
- b) Zyklone [132],

- c) Horizontalwindsichter [132],
- d) Vertikalwindsichter [144],
- e) elektrostatische Verfahren [142,143],
- f) magnetische Verfahren [8].

Die ersten drei Verfahren erwiesen sich als unbrauchbar; als Gründe wurden aufgeführt [132]:

a) für die Vibrationssiebmaschinen

- Wartungsprobleme im Heißzellenbetrieb, die sich bei der relativ großen Anzahl beweglicher Teile ergeben,
- Gefahr der Siebverstopfung in dem hier interessierenden Korngrößenbereich von 300 - 800  $\mu\text{m}$ ,
- zu großer Verschleiß der Siebe beim Einsatz von Systemen, die ein schnelles Verstopfen der Siebe verhindern,

b) für die Zyklone

- Das Auftreten zu hoher Luftgeschwindigkeiten innerhalb der zentrifugalen Windsichter, was zu einer höheren Partikelbruchrate führt,

c) für die horizontale Windsichtung (Abb. 36)

- die Abhängigkeit des Trennergebnisses von folgenden vier Parametern:
  - der Menge der zugeführten Luft,
  - der Menge der zugeführten Partikeln,
  - dem horizontalen Abstand des Strömungsteilers von der Partikelzuführung,
  - dem vertikalen Abstand des Strömungsteilers von der Lufteinlaßöffnung,

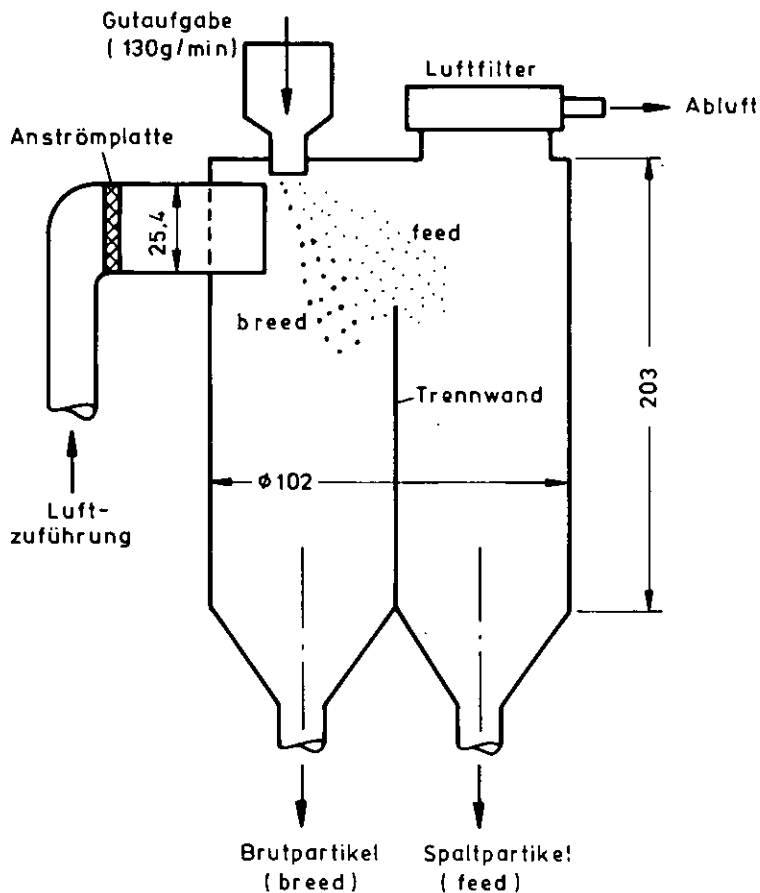


Abb. 36: Versuchsanlage des Horizontalwindsichters [132]

- d) als einzig erfolgversprechendes Windsichtverfahren hat sich die Vertikalwindsichtung erwiesen.

Bei der Vertikalwindsichtung ist die Endfallgeschwindigkeit der Teilchen die maßgebliche Korneigenschaft. Sie oder ihr Äquivalentdurchmesser, d.h. der Durchmesser einer Kugel gleicher Endfallgeschwindigkeit wäre somit als maßgebliche physikalische Größe, nach der man ein Körnungskollektiv ordnen kann, zu wählen. Das Prinzip aller Windsichter besteht darin, daß die in einem strömenden Gas (z.B. Luft) suspendierten Teilchen bestimmten Kräften unterliegen, unter deren Einfluß sie sich nach verschiedenen Orten bewegen und dort aufgefangen werden. Bei fast allen Laborwindsichtern erfolgt eine Trennung in nur zwei Kornklassen, dem Grobgut und Feingut.

Weiterhin hat man den Einfluß der Temperatur auf die Endfallgeschwindigkeit der SiC-beschichteten Spaltstoff B-Partikeln mit  $d_p = 470 \mu\text{m}$  nach [145] für Luft und  $\text{CO}_2$  als Strömungsmedium berechnet. Es ergab sich eine Verringerung der Endfallgeschwindigkeit  $v_\infty$  von max. 10 % bei  $300^\circ\text{C}$  für  $\text{CO}_2$ .

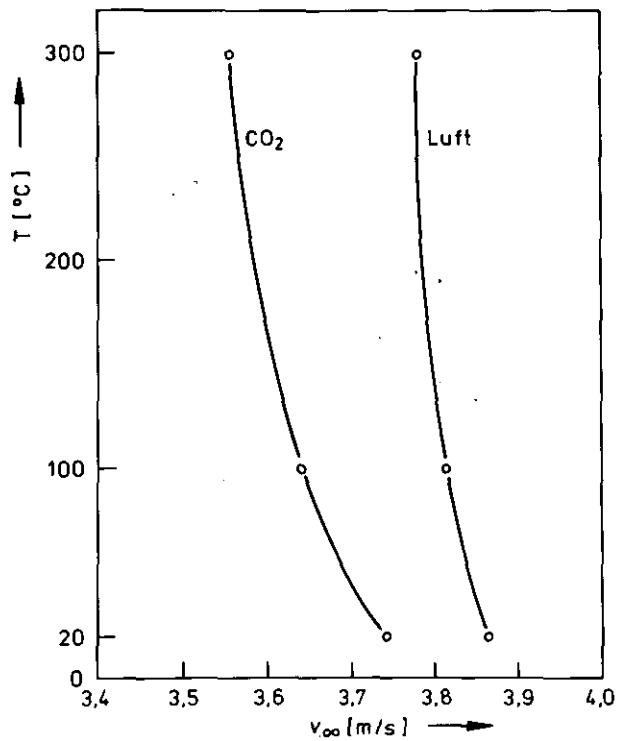


Abb. 37: Ergebnisse der Berechnung der Endfallgeschwindigkeiten  $v_\infty$  von SiC-beschichteten Spaltstoff-Partikeln ( $d_p = 470 \mu\text{m}$ ,  $\rho_p = 3,025 \text{ g/cm}^3$ ) unter Berücksichtigung des Temperatureinflusses und verschiedener Strömungsmedien bei  $P = 1,0133 \text{ bar}$  [146]

Die Anwendungsbereiche der Windsichtung reichen [147] von Korngrößen mit  $d_p = 4 \mu\text{m}$  bis ca.  $10 \text{ mm}$ , anhängig von der Dichte des Stoffes.

Dieser Bereich wird von mehreren verschiedenen Ausführungsformen mit entsprechend engem Anwendungsgebiet überdeckt.

		Korngröße $d_p$ [ $\mu\text{m}$ ]
<u>Windsichtung:</u>	Spiralwindsichter	4 - 100
	Streuwindsichter	50 - 200
	Schwerkraftsichter	200 - 2.000
	Luftherde	500 - 10.000
<u>Siebung:</u>	mech. Siebe	> 100
	Luftstrahlsiebe	> 50

Die Vorteile der Windsichtung liegen darin, daß sich in dem genannten Bereich wesentlich höhere Durchsatzmengen  $\dot{m}$  (kg/h) bewältigen lassen als mit der Siebung (Abb. 37). Ferner eignet sich die Windsichtung bei stark zum Ansetzen neigenden Stoffen besser zur Trennung als die Siebung. Für den interessierenden Körngrößenbereich von 150 - 800  $\mu\text{m}$  scheint nach Abb. 38 nur ein Schwerkraftsichter in der Ausführungsform eines Zick-Zack-Sichters in Frage zu kommen.

#### d1) Zick-Zack-Sichter

Der Zick-Zack-Sichter (ZZ-Sichter) ist ein Steigrohrwindsichter [145], d.h. er besteht aus einem senkrechten Rohr, in dem die Sichtströmung von unten nach oben verläuft. Das Sichtrohr setzt sich aus einzelnen Gliedern in zickzackförmiger Anordnung zusammen (Abb. 39). Man spricht deshalb auch von einer ZZ-Säule, Es handelt sich dabei um ein einfaches, innen glattes, rechteckiges Rohr. Die Trennschärfe steigt mit der Anzahl der Glieder.

Der ZZ-Sichter in Abb. 40 ist für einen Trennbereich mit  $d_T = 200 \mu\text{m} - 4000 \mu\text{m}$  bei Stoffen der Dichte  $\rho = 2,5 \text{ g/cm}^3$  ausgelegt, was Sichtgeschwindigkeiten von  $v_L = 1 - 10 \text{ m/s}$  entspricht [149].



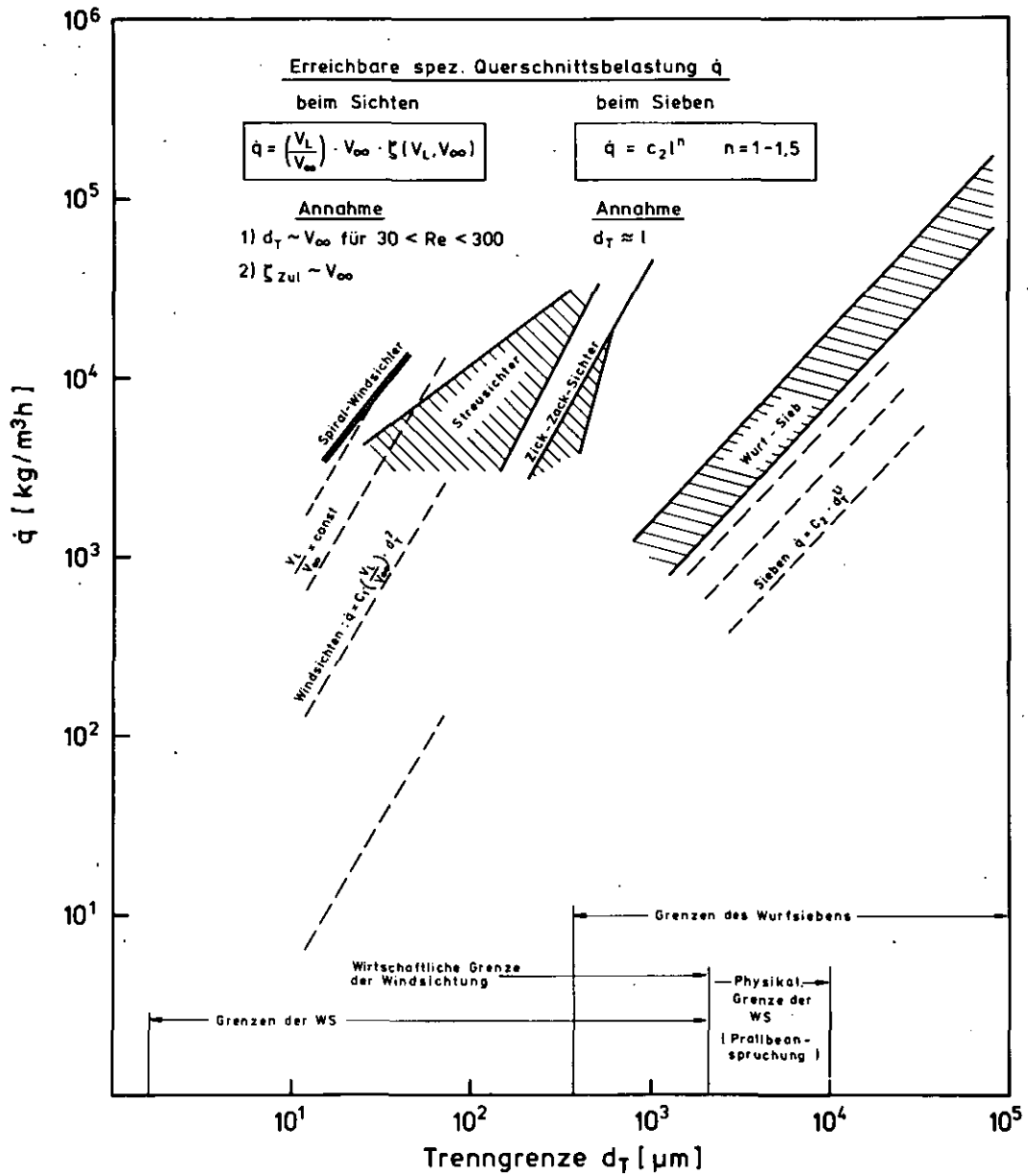


Abb. 38: Überblick einiger  $v_L$ -,  $v_\infty$ -Werte an Windsichtern in Verbindung mit den Trenngrenzen  $d_T$  und dem Energieaufwand  $\dot{q}$  nach [148]

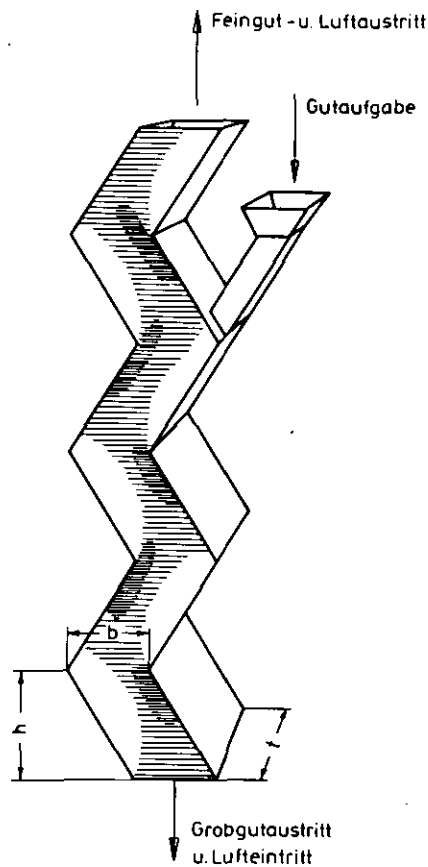


Abb. 39: Strömung im ZZ-Sichter. Die Dichte der Schraffur deutet die Höhe der mittleren Geschwindigkeit der stark turbulenten Strömung an (b Breite, h Höhe, t Tiefe des Gliedes) [145]

Das Sichtrohr besitzt einen quadratischen Querschnitt von  $F = 16 \text{ cm}^2$  und besteht aus 18 Gliedern; damit kann eine Trennschärfe von  $K_{25}/K_{75} \approx 1,17$  erreicht werden (ideale Trennung  $K_{25}/K_{75} = 1$ ).

e) Elektrostatische Trennung von FEED- und BREED-Partikeln

In [144] sind die Versuche der Firma NUKEM dargestellt, Kornkollektive aus bis auf die SiC-Schicht abgebrannten FEED-Partikeln und BREED-Kernen mit einem Elektrowalzenscheider zu trennen.

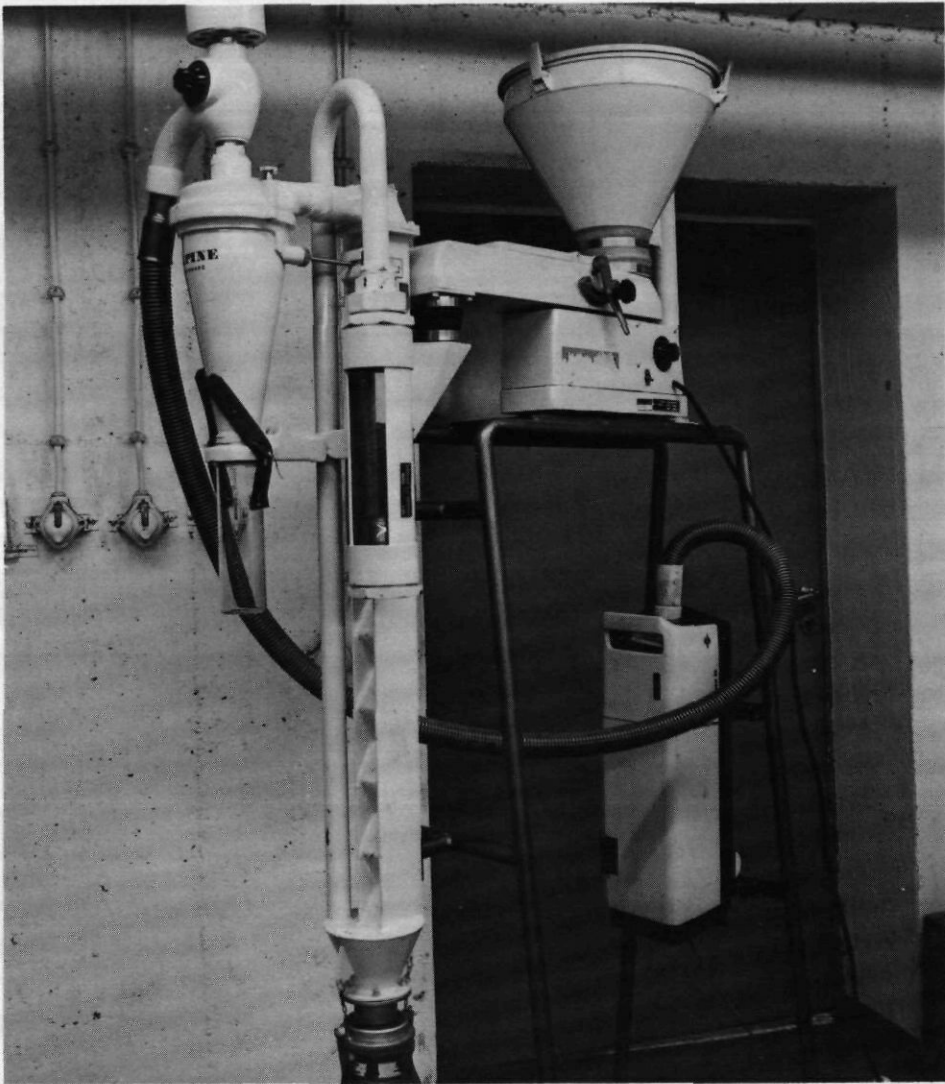


Abb. 40: Zick-Zack-Sichter MZM 1-40 der  
Firma Alpine [149]

Der bei diesen Versuchen eingesetzte Elektrowalzenscheider der Firma Lurgi (Abb. 41) arbeitet mit einem kombinierten elektrostatischen und elektrodynamischen Feld, bei dem die unterschiedliche Ionisation und elektrische Oberflächenleitfähigkeit der Partikeln den Trenneffekt bewirken. Die gut leitenden Rest-SiC-beschichteten FEED-Partikeln geben ihre Ladung schnell ab und werden aufgrund der wirkenden Zentrifugalkräfte in die vordere Kammer 1 geschleudert, die schlecht leitenden BREED-Kerne verbleiben länger an der Walze und werden in die hintere Kammer 3 abgeworfen. Die mittlere Kammer fängt ein Mischgut auf, welches je nach Versuchsbedingungen aus wechselnden Anteilen an FEED- und BREED-Partikeln besteht.

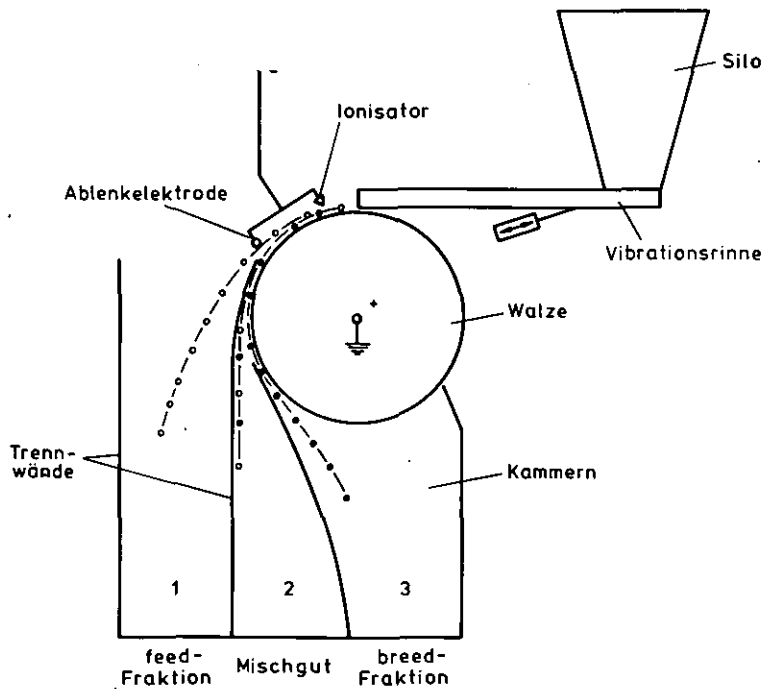


Abb. 41: Elektrowalzenscheider, Funktion schematisch [144]

Einfluß auf das Trennergebnis haben folgende Parameter:

- Aufgabemenge und Durchsatzgeschwindigkeit,
- Umdrehungsgeschwindigkeit der Walze,
- Arbeitsspannung zwischen Ionisator/Elektrode und Walze,
- Form und Stellung des Ionisators und der Elektrode,
- Material und Position der Trennwände,
- das Vorhandensein von Graphit führt verstärkt zu elektrischen Überschlügen und damit zum Zusammenbrechen des elektrischen Feldes, wodurch das BREED-crossover in der Kammer 1 auf 4 % anstieg. Der Th-Anteil in Kammer 2 schwankte zwischen 17 und 99%, entsprechend in der Kammer 3.

Folgende Fragen sind noch nicht geklärt, scheinen aber die Eignung des Verfahrens in Frage zu stellen:

- der Einfluß von Staub ( $U_3O_8$ , SiC) auf das Betriebsverhalten und den Trennerfolg im Dauerbetrieb,
- die Durchschlagfestigkeit der Atmosphäre bei Verwendung von bestrahltem Material (Ersatz von Luft durch Helium als Arbeitsatmosphäre).

Letztere Frage scheint bei der Beurteilung der Eignung des Verfahrens für den Heißzellenbetrieb von außerordentlicher Wichtigkeit zu sein, da nach [150] die elektrische Durchschlagfestigkeit der Arbeitsatmosphäre den Trennwirkungsgrad des elektrischen Starkfeldscheiders erheblich beeinflusst, denn es gilt die Relation

$$E_{\max} < E_b \quad \text{mit}$$

$E_{\max}$  : maximale elektrische Feldstärke

$E_b$  : Durchschlagspannung

f) Magnetisches Verfahren zur Trennung von FEED-BREED-Partikeln

Voraussetzung für jede magnetische Sortierung ist:

1. ein inhomogenes Magnetfeld,
2. Unterschied in den spezifischen Suszeptibilitäten

Die Trennschärfe hängt ab von der

- Stärke des magnetischen Feldes und der Größe des Suszeptibilitätsunterschiedes der zu trennenden Stoffe.

Der in Abb. 42 dargestellte isodynamische Magnetabscheider besteht in der Hauptsache aus einem Elektromagneten mit zwei 225 mm langen Polstücken mit einem engsten Luftspalt zwischen den Polen von 5 mm. Die zu trennenden Stoffe werden über eine

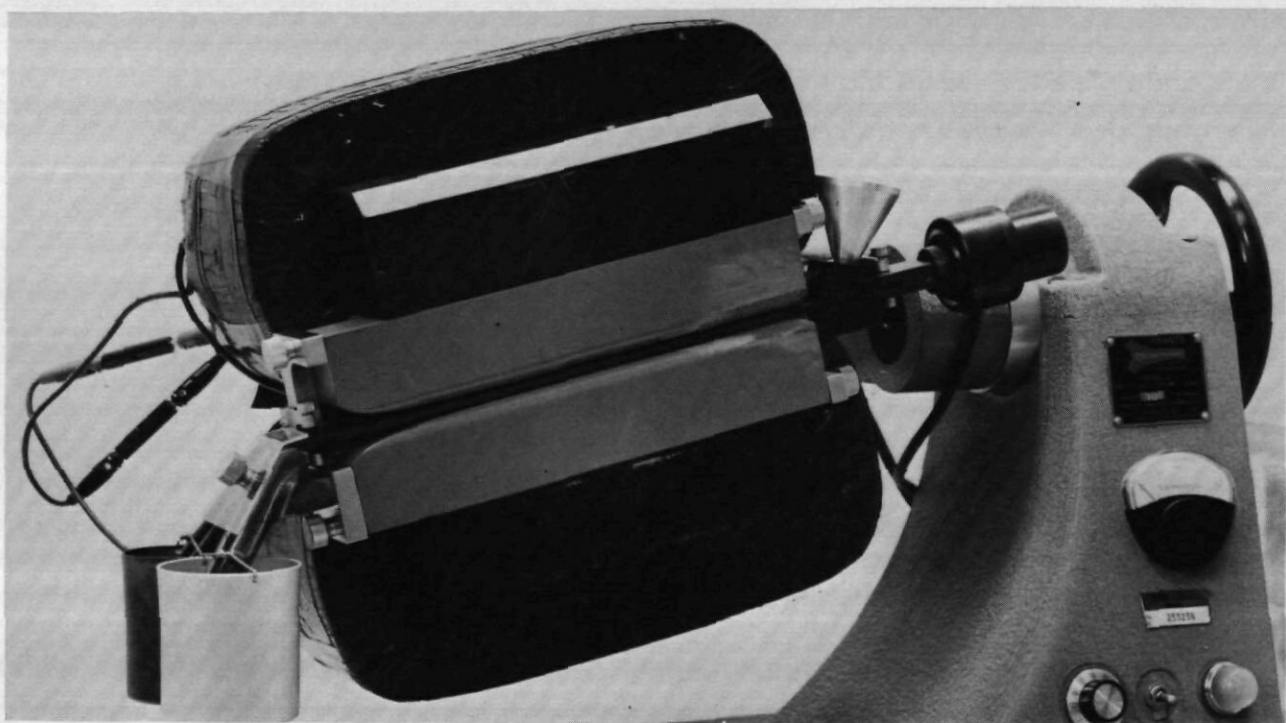


Abb. 42: Isodynamischer Magnetabscheider der  
Fa. Frantz & Co.

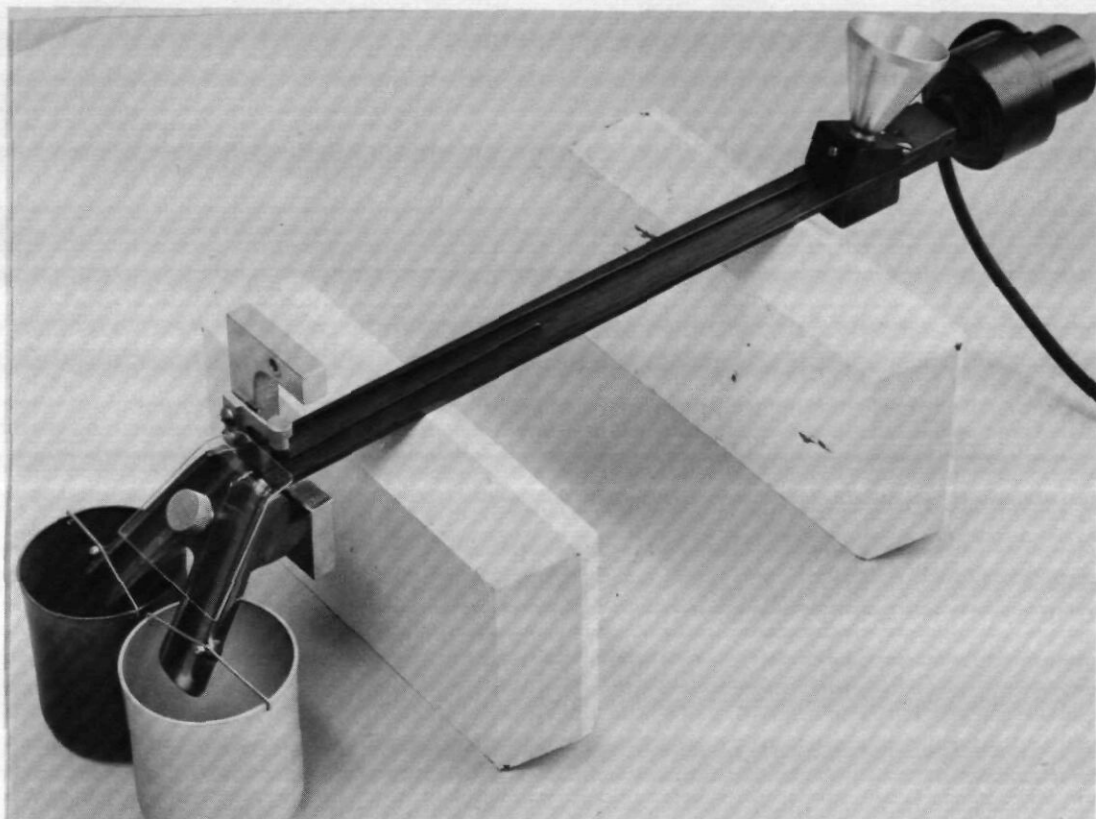


Abb. 43: Rutsche des Magnetscheiders mit Einfüll-  
trichter, Vibrationseinrichtung, Trenn-  
wand und Auffangbehälter

Rutsche (Abb. 43) in den Raum zwischen den Magnetpolen geführt und bewegen sich parallel zu den Polstücken durch das Magnetfeld. Diese Einheit kann durch eine besondere Aufhängung in einer beliebigen Richtung quer (Winkel  $\alpha$ ) und längs (Winkel  $\theta$ ) zur Waagerechten geneigt werden (Abb. 44).

Der Gleichstrom  $i$  [A] durch den Elektromagneten ist stufenlos regelbar von 0 bis 2,0 A.

Der isodynamische Magnetscheider zeichnet sich durch folgende Besonderheiten aus:

1. Hohe Feldstärke im Luftspalt  $H_{\max} = 20\ 000$  Oersted  
entsprechend  $\mu_0 H \text{ grad } H \sim 8 \cdot 10^6 \text{ dyn/cm}^3$ .
2. Außergewöhnliche Länge des Arbeitsbereiches, in dem die magnetischen Kräfte auf das zu trennende Gut wirken können.
3. Konstante Kraftwirkung auf ein Teilchen, das sich längs einer der Hauptströmungsrichtung parallelen Bahn bewegt.

Nach [151] wird ein Magnetscheider als isodynamisch bezeichnet, bei dem im größten Teil des Arbeitsbereiches (operating space) das Magnetfeld isodynamisch ist.

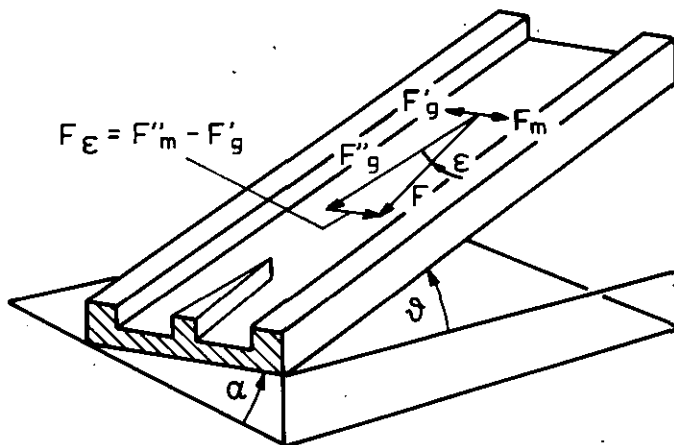


Abb. 44: Kräfte, die auf eine Partikel einwirken, um sie auf der Rutsche des isodynamischen Magnetscheiders herabzubewegen  
( $\alpha$  = Quer-,  $\theta$  = Längsneigungswinkel der Rutsche)

Die wichtigsten Betriebsparameter des Magnetscheiders sind

- a) zur Regelung der Trennschärfe:
  - Querneigung  $\alpha$  der Rutsche und
  - Stromstärke  $i[A]$ ,
- b) zur Regelung des Massendurchsatzes:
  - Längsneigung  $\theta$  der Rutsche und die
  - Vibrationsstärke der Rutsche.

#### 5.4.4.4 Die Trennung der unterschiedlichen FEED-BREED-Partikelgemische durch Kombination verschiedener Verfahren

- a) Charakteristische Eigenschaften der verschiedenen Brennstoffpartikeln und Betriebsbereiche des Vertikalwindsichters.

Der wichtigste Parameter für die Trennung mit einem Vertikalwindsichter ist die Endfallgeschwindigkeit  $v_{\infty}$  der Partikeln, die abhängt von

- Durchmesser der Partikel (Abb. 45),
- Dichte der Partikel (Abb. 45),
- Dichte des Strömungsmediums und
- Widerstandsbeiwert  $= f(Re)$ .

Bei der Herstellung der Partikeln sind Toleranzen in den Schichtdicken  $S$  und Schichtdicken  $\rho$  zugelassen. Deshalb wurden in Abbildung 45 für kleinste, mittlere und größte Werte der Schichtdicken  $S$  bzw. Durchmesser  $d$  und Schichtdicken  $\rho$  die Grenzen der mechanischen Größenbereiche bestimmt, innerhalb derer die vertikalen Windsichterverfahren arbeiten müssen.

Um auf der sicheren Seite zu liegen, wurde die theoretische minimale Partikelmasse  $m_{p/min}$  bzw.  $m_{Po/min}$  aus der Summe der Produkte der niedrigsten Dichten  $\rho_{min}$  und kleinsten Durchmessern  $d_{min}$  gebildet. Bei der Berechnung der mittleren und maximalen Partikelmassen wurde entsprechend verfahren [8].



Partikeltyp	Durchmesser $d$ [cm]			Dichte $\rho$ [g/cm <sup>3</sup> ]			Endfallgeschwindigkeit $v_{\infty}$ [m/s]		
	min.	mittel	max.	min.	mittel	max.	min.	mittel	max.
1 Feed (UC <sub>2</sub> -TRISO)	0,0359	0,0632	0,09	2,56	2,27	2,14	2,67	4,28	5,75
2 Feed (UC <sub>2</sub> -TRISO) abgebrannt	0,0319	0,0546	0,077	2,86	2,48	2,39	2,53	3,90	5,01
3 Feed-Kerne (UC <sub>2</sub> )	0,0149	0,020	0,025	10,77	10,77	10,77	2,01	3,83	4,86
4 Breed (ThO <sub>2</sub> -BISO)	0,07	0,0925	0,111	4,59	3,51	3,21	7,4	7,86	9,51
4a Breed (ThO <sub>2</sub> -TRISO)	0,068	0,09	0,114	4,2	3,3	2,85	6,84	7,33	8,16
5 Breed-Kerne (ThO <sub>2</sub> )	0,05	0,0565	0,063	9,94	9,94	9,94	9,0	9,82	10,71
6 Feed (UO <sub>2</sub> -TRISO)	0,036	0,066	0,098	2,48	2,17	2,15	2,63	4,39	6,12
7 Feed (UO <sub>2</sub> -TRISO) abgebrannt	0,032	0,058	0,086	2,77	2,29	2,2	2,49	4,01	5,58
8 Feed-Kerne (UO <sub>2</sub> )	0,0149	0,02	0,025	10,77	10,77	10,77	2,01	3,83	4,86
9 F.S.V.-TRISO-Feed B	0,044	0,052	0,0627	2,73	2,76	2,71	3,41	4,04	4,69
10 F.S.V.-TRISO-Feed B (abgebrannt)	0,0387	0,047	0,0552	3,08	3,0	2,98	3,32	3,87	4,54
11 F.S.V.-Feed-Kerne B	0,02	0,024	0,028	9,5	9,5	9,5	3,52	4,25	5,08
12 F.S.V.-TRISO-Breed A	0,053	0,065	0,076	3,3	3,37	3,33	4,67	5,65	6,87
13 F.S.V.-Breed-Kerne A	0,0304	0,037	0,0436	9,5	9,5	9,5	5,42	6,58	7,74

Abb. 45: Theoretische Endfallgeschwindigkeit  $v_{\infty}$  von TRISO-FEED- (1-3, 6-8), BISO-BREED- (4,5), TRISO-BREED (4a) und F.S.V.-Referenzpartikel (9-13)

In den Abb. 46 - 49 sind die Endfallgeschwindigkeiten  $v_{\infty}$  über dem Partikeldurchmesser  $d_p$  aufgetragen und die Bereiche eingegrenzt, innerhalb der die verschiedenen Partikelsorten nach DIN 50049 liegen können. Es wurde bei den Berechnungen von  $v_{\infty}$  auch berücksichtigt, daß bei schlechter Graphitverbrennung bei einem Teil sowohl der  $UC_2/UO_2$ - wie  $ThO_2$ -Partikeln die äußersten PyC-Schichten nicht verbrannt worden sind und bei einem anderen Teil der  $UC_2/UO_2$ -Partikeln die Beschichtungen zerstört worden sind, so daß nur noch die Kerne ( $d_K = 200 \mu m$ ) vorliegen.

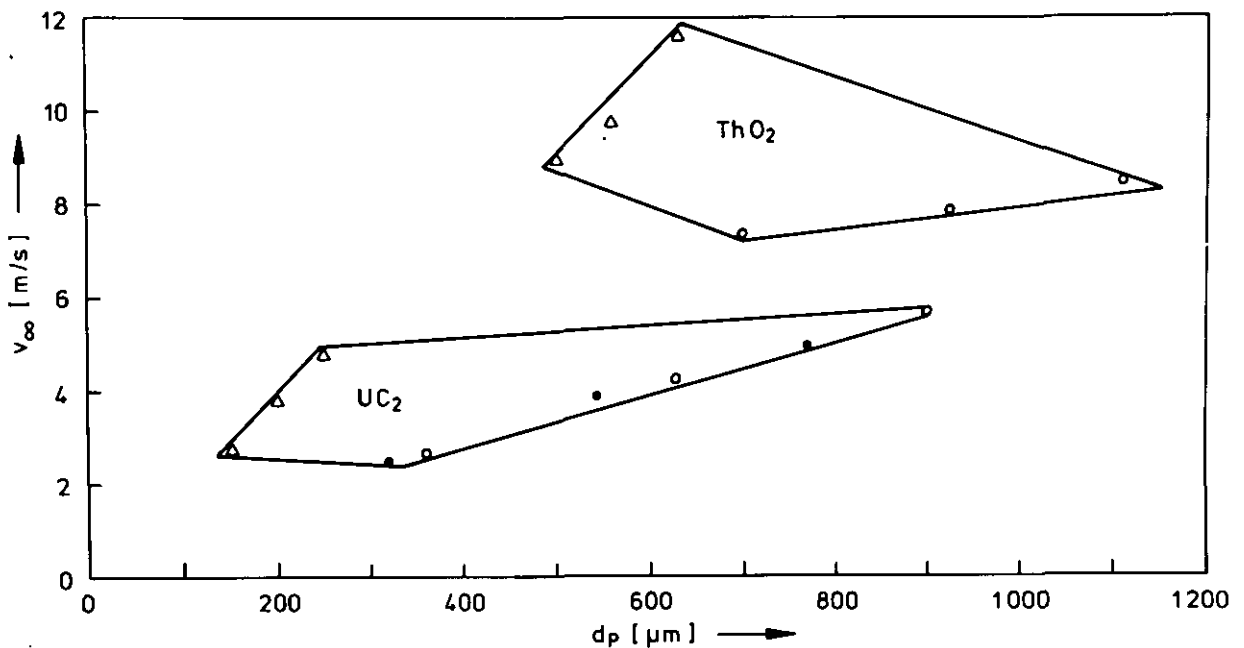


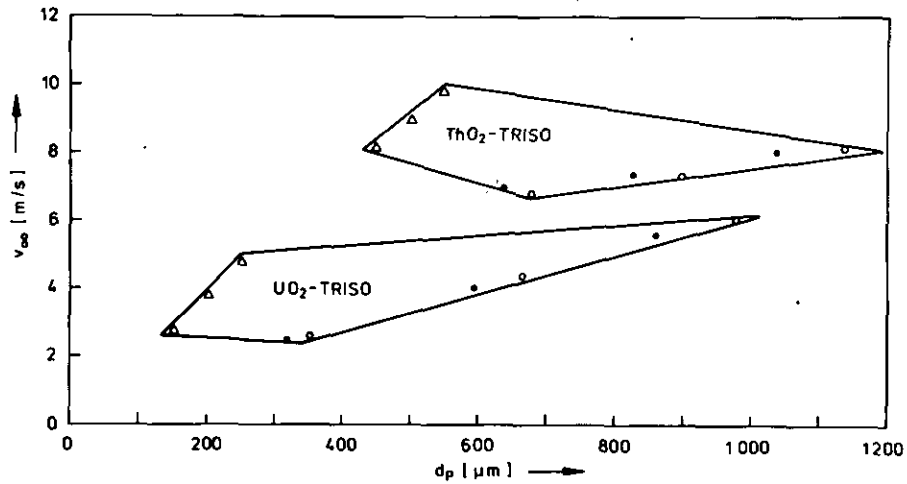
Abb. 46: Theoretische Korngrößen- und Endfallgeschwindigkeitsbereiche von  $UO_2$ -TRISO- und  $ThO_2$ -BISO-Partikeln mit

$$\Delta v_{\infty \min} = 1,2 \text{ m/s}$$

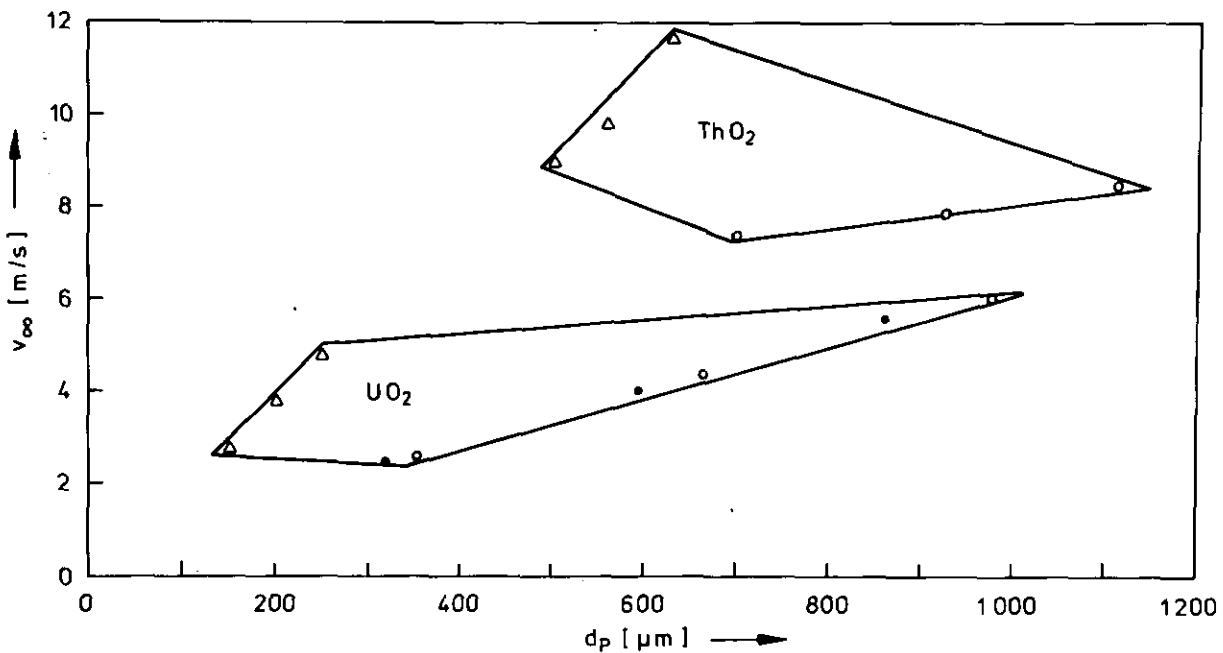
$\Delta$  : Kerne

$\circ$  : beschichtete Partikeln

$\cdot$  : Partikeln ohne äußerster PyC-Beschichtung  
(abgebrannt)



**Abb. 47:** Theoretische Korngrößen- und Endfallgeschwindigkeitsbereiche von  $UO_2$ -TRISO- und  $ThO_2$ -TRISO-Partikeln mit  $\Delta v_{\infty} = 0,7 \text{ m/s}$   
 $\Delta$  : Kerne  
 $\cdot$  : abgebrannte Partikeln  
 $\circ$  : TRISO-Partikeln



**Abb. 48:** Theoretische Korngrößen- und Endfallgeschwindigkeitsbereiche von  $UC_2$ -TRISO- und  $ThO_2$ -BISO-Partikeln mit  $\Delta v_{\infty \text{ min}} = 1,6 \text{ m/s}$

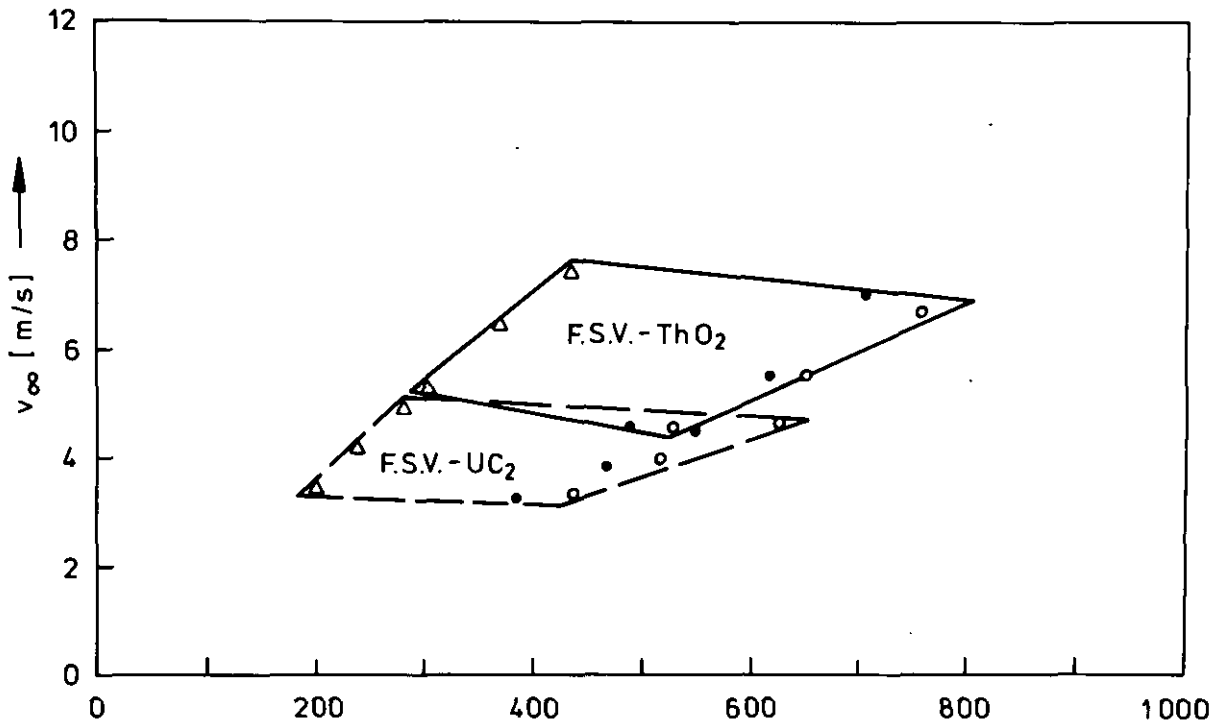


Abb. 49: Theoretische Korngrößen- und Endfallgeschwindigkeitsbereiche von F.S.V.-TRISO-TRISO-Referenzpartikeln

- $\Delta$  : Kerne
- $\circ$  : beschichtete Partikeln
- $\cdot$  : Partikeln ohne äußerster PyC-Beschichtung (abgebrannt)

Die Abb. 46 - 49 zeigen die minimalen Unterschiede in den Sinkgeschwindigkeiten  $\Delta v_\infty$  von vier verschiedenen FEED-BREED-Partikelgemischen in einem Korngrößenbereich  $\{100 \mu\text{m} \leq d \leq 1000 \mu\text{m}\}$ . Der berechnete minimale Unterschied ergibt sich aus der Differenz der

- größten Endfallgeschwindigkeit der FEED-Partikeln und der
- kleinsten Endfallgeschwindigkeit der BREED-Partikeln.

Folgende Werte lassen sich aus Abb. 45 entnehmen:

Gemisch-Nr.	FEED-Partikel	BREED-Partikel	$\Delta v_{\infty}$ [m/s]
1	UC <sub>2</sub> -TRISO	ThO <sub>2</sub> -BISO	1,6
2	UC <sub>2</sub> -TRISO	ThO <sub>2</sub> -TRISO	1,1
3	UO <sub>2</sub> -TRISO	ThO <sub>2</sub> -BISO	1,2
4	UO <sub>2</sub> -TRISO	ThO <sub>2</sub> -TRISO	0,7
5	UC <sub>2</sub> -TRISO (F.S.V)	ThO <sub>2</sub> -TRISO (F.S.V)	<0
6	UC <sub>2</sub> -TRISO (abgebrannt)	ThO <sub>2</sub> -Kern	5,9

Als optimales FEED-BREED-Partikelgemisch muß das Kornkollektiv Nr. 6 bezeichnet werden und zwar handelt es sich hier um ein BISO-BREED/TRISO-FEED-Partikelgemisch, bei dem im Verbrennungs-Head-End alle PyC-Schichten bzw. die äußerste PyC-Schicht abgebrannt ist, d. h. also, daß nur

- FEED-Partikeln ohne äußerste PyC-Schicht und
- BREED-Kerne

vorliegen.

Eine Analysensichtung eines solchen idealen Gemisches zeigt Abb. 50.

Abb. 51 gibt den zur Trennung dieses Gemisches günstigsten Arbeitspunkt des Alpine-Labor-ZZ-Sichters an:

- Klappenstellung Gutaufgabe 2
- Dosierskaleneinteilung der Dosierrinne 2,5
- Durchsatzleistung 10 kg/h
- Sichtvolumen 25 Nm<sup>3</sup>/h

Eine Verkleinerung der Differenz  $\Delta v_{\infty}$  unter dem Wert von  $\Delta v_{\infty} = 5,9$  m/s muß zwangsläufig zu einer Verschlechterung des Trennergebnisses bei Verwendung des oben beschriebenen ZZ-Sichters führen.

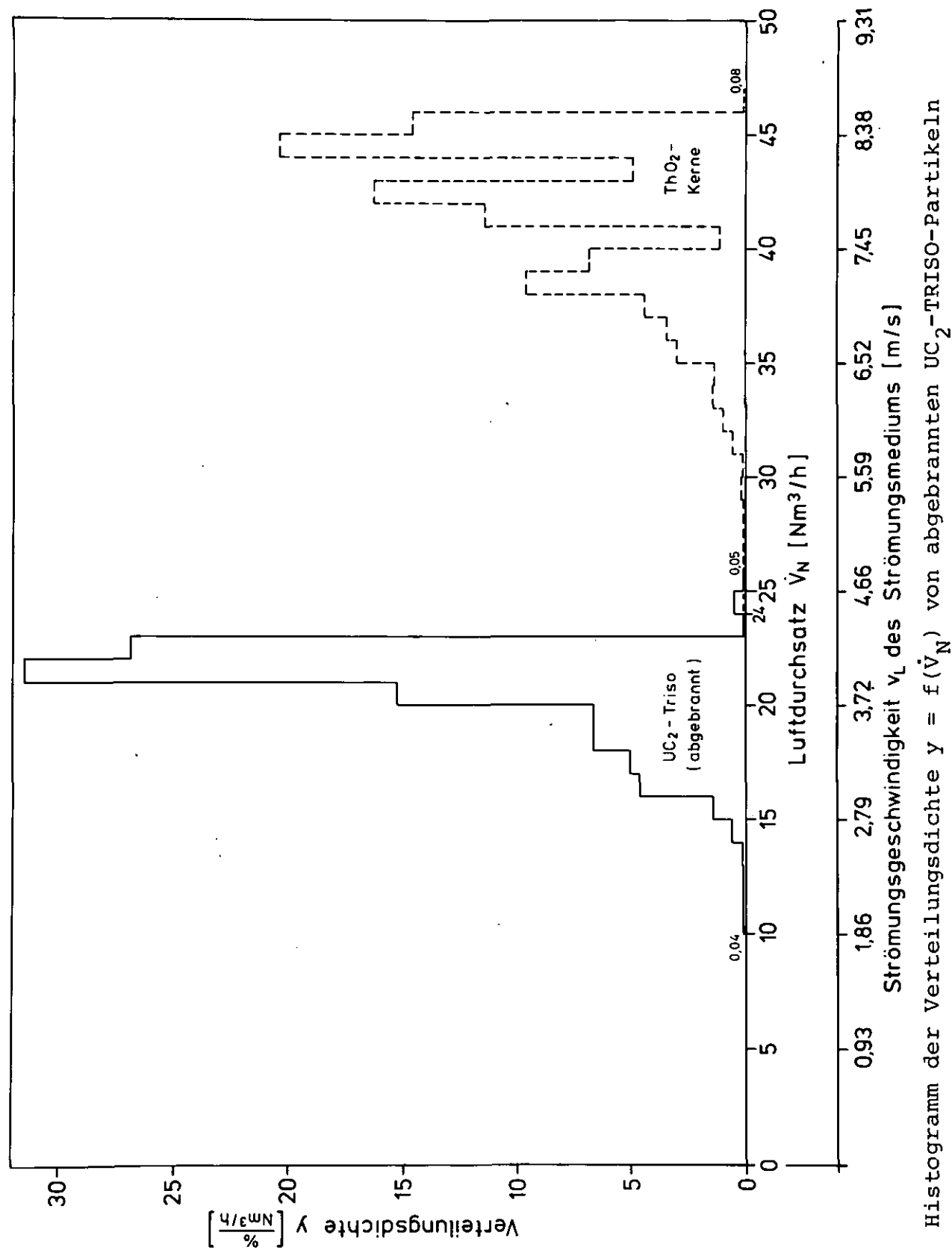


Abb. 50: Histogramm der Verteilungsdichte  $y = f(\dot{V}_N)$  von abgebrannten UC<sub>2</sub>-TRISO-Partikeln

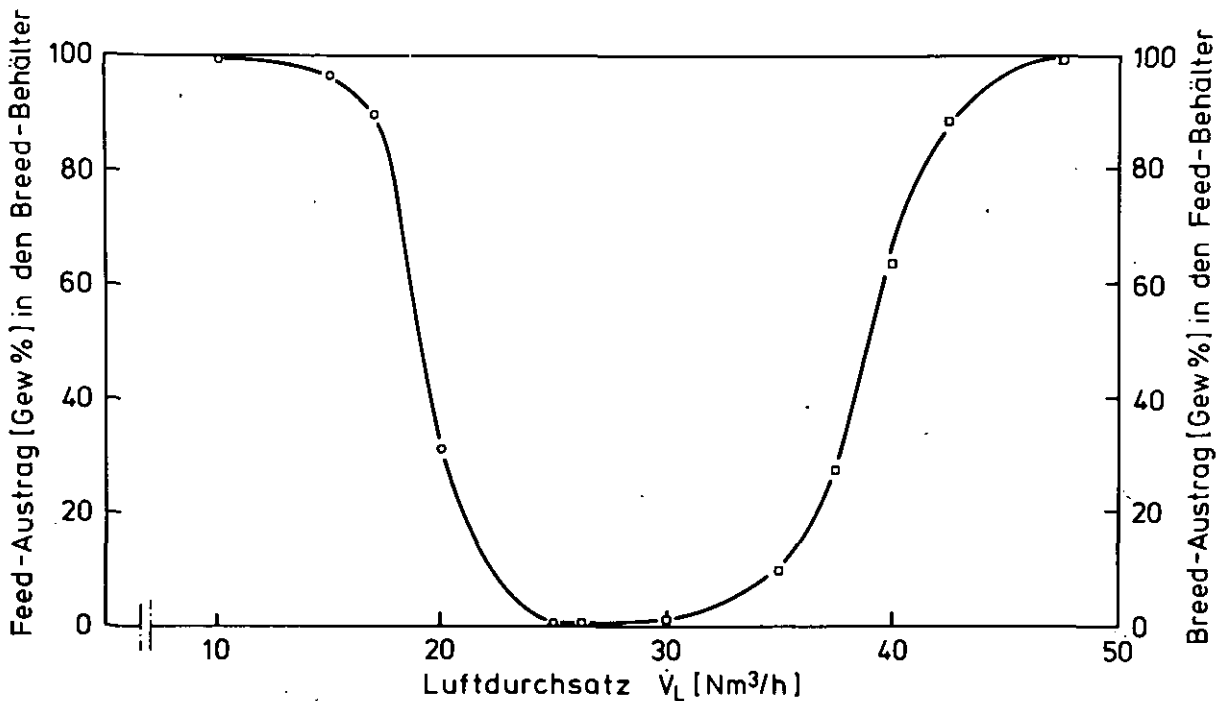


Abb. 51: FEED(o)- und BREED( )-Crossover in Abhängigkeit vom Luftdurchsatz  $\dot{V}_L$  des ZZ-Sichters MZM 1-40

Verbesserungen der Trennergebnisse lassen sich erzielen durch (allgemein):

- geringere Durchsätze,
- Verlängerung der ZZ-Säule,
- höhere Geschwindigkeit des Strömungsmediums,
- Position der Gutzuführung.

Eine realistische Zusammensetzung des zu trennenden Kornkollektivs aus TRISO-FEED und BISO-BREED-Partikeln enthält neben den

- TRISO-FEED-Partikeln ohne äußerster PyC-Schicht und den
- BREED-Kernen

folgende Verunreinigungen und zwar

- unverbrannten Restgraphit,
- TRISO-Hüllbruch (Abb. 53),
- FEED-Kerne,



- FEED -Kernbruch (Abb. 52),
- BREED -Kernbruch (Abb. 52).



Abb. 52: FEED-Kerne und -Kernbruch (schwarz) und BREED-Kerne und -Kernbruch (gelb) nach Wärmebehandlung bei  $t = 1050^{\circ}\text{C}$  30 x

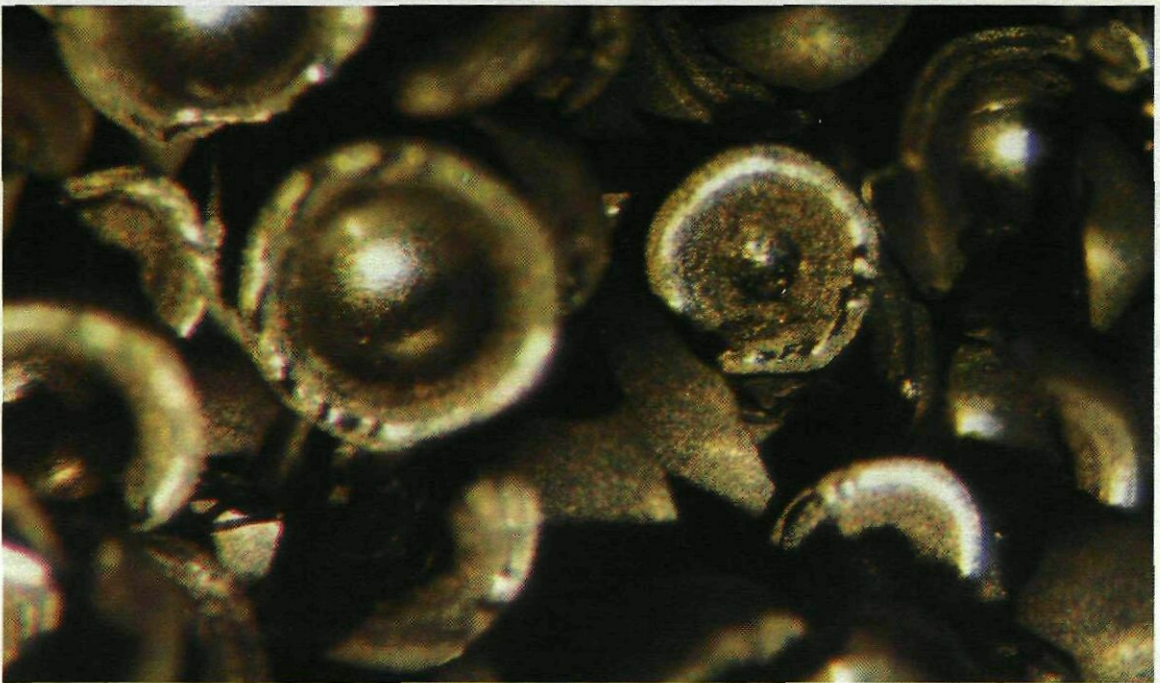


Abb. 53: TRISO-Hüllbruch



Diese Verunreinigungen verschlechtern das Trennergebnis, insbesondere Restgraphitanteile mit einer Korngröße  $d > 1000 \mu\text{m}$ .

Mit der für die Trennung von unzerstörten FEED-BREED-Partikeln experimentell ermittelten Trenn-Sichtgeschwindigkeit

$v_T = 4,66 \text{ m/s}$  ( $\hat{=} \dot{V}_N = 25 \text{ Nm}^3/\text{h}$ ) erhält man also bei Verwendung des realistischen Versuchsgutes einen Feingutaustrag folgender Zusammensetzung:

1. Restgraphit ( $200 \mu\text{m} < d_p < 1000 \mu\text{m}$ )
2. TRISO-FEED-Hüllbruch
3. abgebrannte TRISO-FEED-Partikeln
4. BREED-Kernbruch ( $d_p < 200 \mu\text{m}$ )
5. FEED-Kerne bzw. -Kernbruch ( $d_p < 200 \mu\text{m}$ )

In den Grobgutbehälter werden nur

1. BREED-Kerne und BREED-Kernbruch ( $d_p > 200 \mu\text{m}$ )

ausgetragen, vorausgesetzt, die Graphitkörner mit  $d_p > 1000 \mu\text{m}$  sind vorher abgesiebt worden.

- b) Magnetische Eigenschaften der verschiedenen Brennstoffpartikel und Betriebsbereich des Magnetscheiders.

Der in dem Feingutaustrag vorhandene Schwermetallbruch läßt sich mit Windsichterverfahren nicht mehr trennen, da die

- Dichte und der
- Korndurchmesser

dieses Kornkollektives aus  $\text{UO}_2$ - und  $\text{ThO}_2$ -Kernbruchstücken keine Unterschiede aufweisen.

Um den Verlust von Spaltstoff durch FEED.-crossover" und von Brutstoff durch "BREED-crossover" bei der Trennung mit dem ZZ-Sichter unter dem geforderten 1 % zu halten, müssen sich die zu trennenden Kornfraktionen im Mittel in ihren Endfallgeschwindigkeiten mindestens um den Faktor zwei unterscheiden

$$(v_{\infty, \text{BREED}}/v_{\infty, \text{FEED}}) \geq 2,3.$$

Die saubere Trennung des Kernbruches kann deshalb nur noch mit magnetischen Verfahren erfolgen. Bei den magnetischen Trennverfahren werden die unterschiedlichen Massens susceptibilitäten  $\chi$  [ $\text{cm}^3/\text{g}$ ] der zu trennenden Stoffe ausgenutzt, je größer die Unterschiede, desto schärfer ist die Trennung.

In Abb. 54 sind die Suszeptibilitäten der bei der FEED-BREED-Trennung zu berücksichtigenden Stoffe aufgelistet. Daraus geht hervor, daß als einziger Stoff  $\text{UC}_2$  bzw.  $\text{UO}_2$  paramagnetisch ist, alle übrigen diamagnetisch, d. h. nicht magnetisch sind.

Der verwendete isodynamische Magnetscheider mit einer Feldstärke von 20.000 Oe trennt zwei Kornfraktionen mit einem Suszeptibilitätsunterschied von  $\Delta\chi_m = 2 \cdot 10^{-6} \text{ cm}^3/\text{g}$  und maximalen Durchsätzen von  $\dot{m} = 3,5 \text{ kg/h}$ . Eine Reihenschaltung mehrerer Magnetscheider verbessert das Trennergebnis.

Aus einer beliebigen Kornfraktion mit einem mittleren Korndurchmesser von  $d_k < 1000 \text{ }\mu\text{m}$  lassen sich jeweils die paramagnetischen Stoffe aussortieren, im Fall des FEED-BREED-Kornkollektives das  $\text{UC}_2$ - bzw.  $\text{UO}_2$ -Kernmaterial. Beschichtete Feed-Partikeln lassen sich nur dann magnetisch abtrennen, wenn das Verhältnis

$$\frac{\text{paramagnetische Kernmasse}}{\text{unmagnetische Beschichtungs- masse}} > 1,4$$

ist.

Abb. 55 zeigt die magnetischen Massens susceptibilitäten für FEED-Partikel ( $\text{UO}_2$  und  $\text{UC}_2$ )

- mit und ohne Beschichtung,
- mit verschiedenen Kerndurchmessern und im
- kalten und abgebrannten (80 % fifa) Zustand.

Berechnungen zeigten, daß die spezifische Suszeptibilität der abgebrannten  $\text{UO}_2$ -Partikel in Abhängigkeit vom Gehalt der stark paramagnetischen Spaltprodukte wie Nd-60 und La-57 und Eu-63 weiter zunimmt (Vergleich Abb. 54, Nr. 3 und Nr. 7); Suszeptibilitätsmessungen einiger bis zu 80 % fifa abgebrannten  $\text{UO}_2$ -Schwermetallkerne konnten dies bestätigen.

Stoff	$\chi_{\text{mol}} \cdot 10^6$ $\left[ \frac{\text{cm}}{\text{mol}} \right]$	$\chi_{\text{m}} \cdot 10^6$ $\left[ \frac{\text{cm}}{\text{g}} \right]$	$\chi_{\text{m}} \cdot 10^9$ $\left[ \frac{\text{m}}{\text{kg}} \right]$	T [K]
Th <sub>met.</sub>	+ 95,6	+ 0,412	+ 5,177	300
Th <sub>met.</sub>	+ 132	+ 0,57	+ 7,163	293
Th <sub>met.</sub>	+ 153	+ 0,66	+ 8,294	90
ThC <sub>2</sub>	+ 3,84	+ 0,015	+ 0,188	295
ThO <sub>2</sub>	- 16	- 0,06	- 0,754	ord
UC <sub>2</sub>	+ 840	+ 3,2	+ 40,212	80-300
UC	+ 800 bis + 900	+ 3,05 bis + 3,4	+ 38,3 bis + 42,7	100-300
UO <sub>2</sub>	+2360	+ 8,74	+ 109,830	293
SiC	- 12,8	- 0,319	- 4,00	293
Graphit +)	+ 7 bis + 11	+ 0,58 bis + 0,92	+ 7,3 bis + 11,5	293

Abb. 54: Molare- und Massensuszeptibilitäten der bei der FEED-BREED-Trennung zu berücksichtigen-  
den Stoffe im cgs- und SI-Maßsystem [8]

+ ) Die unterschiedlichen Suszeptibilitätswerte in dem angegebenen Bereich sind ab-  
hängig von dem Graphitierungsgrad der Graphitproben

Nr.	Stoff	Massenssuszeptibilität $\chi_m [10^{-6} \text{cm}^3/\text{g}]$
1.	UC <sub>2</sub> -SM <sup>(+)</sup>	3,85
2.	UC <sub>2</sub> -TRISO <sup>(+)</sup> (ohne äußerste PyC-Schicht)	nicht mehr meßbar
3.	UO <sub>2</sub> -SM <sup>(+)</sup>	9,0
4.	UO <sub>2</sub> -BISO <sup>(.)</sup>	5,4
5.	UO <sub>2</sub> -TRISO (ohne äußerste PyC-Schicht)	5,56
6.	UO <sub>2</sub> -TRISO	4,8
7.	UO <sub>2</sub> -SM <sup>(+)</sup> 80 % fifa	10,14 (gerechnet)
8.	UO <sub>2</sub> -SM <sup>(+)</sup> 80 % fifa	> 4 (gemessen)

Abb. 55: Ergebnisse der Suszeptibilitätsmessungen mit dem Frantz-Magnetscheider [8]

(+) Partikeln mit Kerndurchmesser  $d_k = 200 \mu\text{m}$

(.) Partikeln mit Kerndurchmesser  $d_k = 500 \mu\text{m}$

Die mittlere berechnete Empfindlichkeit des Frantz Magnetscheiders liegt bei  $\Delta\chi_m = 0,44 \cdot 10^{-6} \text{cm}^3/\text{g}$ .

Praktisch lassen sich Gemische mit einem Suszeptibilitätsunterschied von  $\Delta\chi_m \geq 2 \cdot 10^{-6} \text{cm}^3/\text{g}$  sauber trennen. Der Abb. 56 läßt sich entnehmen, welche Partikelgemische sich mit dem Frantz-Magnetscheider sauber trennen lassen.

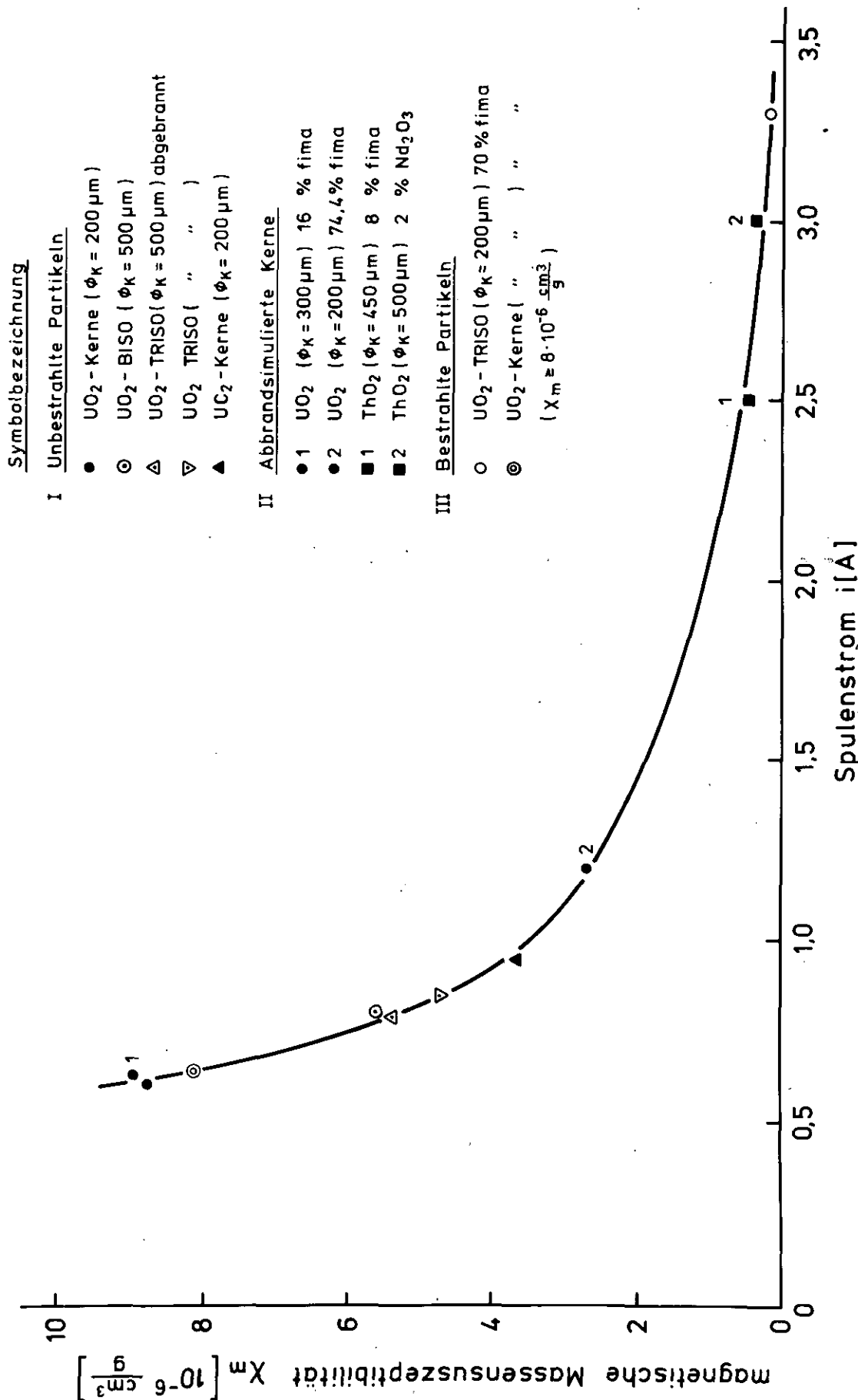


Abb. 56: Spezifische Suszeptibilität  $\chi_m$  in Abhängigkeit des Spulenstromes  $i$  für verschiedene Partikeltypen, gemessen mit dem Isodynamik-Magnetscheider bei konstanter Querneigung  $\alpha = 10^\circ$  [8]

- c) Möglichkeiten zur Trennung verschiedenartiger FEED-BREED-Partikelngemische durch Kombination verschiedener Trennverfahren.

Die Abb. 57 gibt einen Überblick über zu erwartende Zusammensetzungen an FEED-BREED-Partikeln, SM-Kernen, -Kernbruch, Hüllbruch sowie Graphitanteilen.

Die Anzahl der Verfahrensschritte hängt zwangsläufig ab von:

1. der geforderten Reinheit des Zielproduktes,
2. der Anzahl der Gemischkomponenten,
3. von der Anzahl bzw. der Ausgeprägtheit der für ein bestimmtes Trennverfahren relevanten Eigenschaft des Zielproduktes.

Bei einem Gemisch aus unzerstörten  $\text{ThO}_2$ -Kernen und TRISO-beschichteten FEED-Partikel ist die hohe Endfallgeschwindigkeit der  $\text{ThO}_2$ -Kerne für eine FEED-BREED-Trennung des geforderten geringen Crossovers von  $< 1 \%$  ausreichend.

Zur Trennung eines Gemisches aus  $\text{UO}_2$ - und  $\text{ThO}_2$ -Kernbruch reicht die hohe magnetische Suszeptibilität der  $\text{UO}_2$ -Kerne für eine exakte Trennung aus.

Literatur: [8,129,132,143,144,146,154]

#### 5.4.5 Sonstige Einzeluntersuchungen

1. Kosten des Verbrennungs-HEAD-END's.

Hierzu wurden zwei Studien angefertigt.

Zusammenfassend wurden, basierend auf dem Stand von 1976, die Kosten für eine 5000 MWe-Baueinheit (Typ VENUS) auf ca.  $53 \cdot 10^6$  DM kalkuliert.  
Literatur: [103].

2. Über Verfügbarkeit, Fernbedienbarkeit, Wartungspläne, Materialauswahl, Sicherheit, Konstruktion gibt es in Deutschland nur die zum Projekt VENUS (Kap. 5.6.1) veröffentlichten Daten. Auf amerikanischer Seite wurden eine Fülle von Dokumentationen angefertigt, die aber nur als Interne Berichte gedruckt wurden und somit schwerer zugänglich sind, hierzu sei auf die Dokumentationen der GAC verwiesen.  
Literatur: [61,160].

3. Theoretische Beschreibung der Verbrennungswirbelschicht, Sicherheitsfragen.

Neben den Standardwerken zur Wirbelschichttechnik [40,41,42,43] sei hier auf die Berichte [29,39] verwiesen, in denen auf die speziellen Gegebenheiten des Wirbelschichtverbrennungsverfahrens für  $\text{CO}_2\text{-O}_2\text{-(CO)}$ -angeströmte Graphit/Schwermetallmischungen eingegangen wird.

Literatur: Wirbelschichttechnik allgemein

[40,41,42,43],

Head-End-spezifisch [29,39].

Explosionsverhalten von Graphitstäuben und  $\text{CO:CU}_2\text{:O}_2$ -Gasgemischen: [139,140,141].

#### 5.5 Projekte, Vorhaben

Im Jahre 1966 wurde vom Bundesministerium für wissenschaftliche Forschung ein speziell auf die Aufarbeitung thoriumhaltiger Kernbrennelemente ausgerichtetes Projekt ins Leben gerufen, das unter

der Federführung der KFA ausführliche theoretische und experimentelle Untersuchungen zur Entwicklung wirtschaftlicher Aufarbeitungsverfahren zum Ziele hat. Neben der KFA gehörten dieser Arbeitsgemeinschaft die Firmen Farbenfabriken Bayer AG, Farbwerke Hoechst AG, Fried. Krupp GmbH, Gelsenkirchener Bergwerks-AG, Kali-Chemie AG sowie die NUKEM GmbH an. Ein erster Projektabschnitt ging im Dezember 1968 zu Ende. Ein Anschlußprojekt hatte eine Laufzeit bis 1972.

Der erste Projektabschnitt (1966 bis 1968) war durch ein relativ breit angelegtes Forschungs- und Entwicklungsprogramm im Labormaßstab gekennzeichnet, aus dem zum Ende 1968 einige wenige erfolgversprechende Varianten herausgearbeitet wurden. In den USA und der Bundesrepublik hat sich dann um 1970 die inertstofffreie Wirbelschichtverbrennung des Graphits als das HEAD-END-Verfahren herauskristallisiert. Bis 1979 war die Aufarbeitung thoriumhaltiger Brennelemente mit den verschiedenen Varianten Gegenstand der Untersuchungen. 1979 beschloß man die Arbeiten zur Wiederaufarbeitung von HTR-Brennelementen auf die Behandlung von LEU-beladenen Brennelementen mit TRISO-beschichteten SM-Kernen auszurichten. Man hofft, so HTR-Erstanlagen durch eine LWR-WAA-Technologie mit HTR-spezifischem HEAD-END entsorgen zu können. Langfristig sind weiterhin für Hochtemperatureaktoren thoriumhaltige Brennelemente vorgesehen.

Ab 1977 wurden alle Arbeiten zum Brennstoffkreislauf durch das HBK-Projekt (Hochtemperatur-Brennstoffkreislauf) koordiniert. Unter der Federführung der KFA-Jülich wird in Zusammenarbeit mit Industriefirmen an diesem Projekt gearbeitet. Ziel des HBK-Projekts ist die Entwicklung einer wirtschaftlichen und sicheren HTR-Brennstoffkreislauftechnologie. Die Arbeiten zur Weiterentwicklung der HEAD-END-Technologie für eine Wiederaufarbeitungsanlage wird hier im Projektbereich II koordiniert [107].

Im Laufe der Zeit wurden größere geschlossene Projekte und Verfahren zur HEAD-END-Entwicklung initiiert bzw. durchgeführt. Es handelt sich hierbei um folgende Vorhaben: JUPITER, VENUS, ARTHUR, JPHF, JFPD and AVR-VI.



### 5.5.1 Projekt JUPITER

Die Arbeiten zum Projekt JUPITER wurden im Jahre 1971 aufgenommen. Der Name JUPITER ist eine Abkürzung für Juelicher Pilotanlage für Thorium Element Reprocessing. Übergeordnetes Ziel dieses Vorhabens, das den Bau und Betrieb einer Wiederaufarbeitungs-Versuchsanlage zum Inhalt hat, ist es, die Basistechnologie der Rückgewinnung von Uran und Thorium aus bestrahlten HTR-Brennstoffen zu entwickeln und die grundsätzliche technische Realisierbarkeit der Wiederaufarbeitung von HTR-Brennelementen zu demonstrieren [108, 120]. Spezifische Ziele sind u. a.:

- Erprobung von apparativen Neukonstruktionen im "heißen" Dauerbetrieb
- Entwicklung einer den speziellen Apparatekonstruktionen angepaßten Reparatur- und Wartungstechnik
- Gewinnung von belastbaren Daten über das Langzeitverhalten von Materialien gegenüber Strahlung, erhöhten Temperaturen und korrosiven Medien
- Erprobung verschiedener chemischer Prozeßvarianten (zweizyklischer Thorex-Prozeß, einzyklischer Thorex-Prozeß, Interim-Prozesse)
- Bestimmung von Dekontaminationsfaktoren und Wertstoffausbeuten
- Erprobung von meß- und regeltechnischen Einrichtungen
- Überprüfung der entwickelten Methoden und Verfahren zur Spaltstoffflußkontrolle und Materialbilanzierung
- Nachweis der Genehmigungsfähigkeit von Komponenten und Materialien
- Gewinnung von Daten für Kostenberechnungen und Vergrößerungsstudien

Das in der JUPITER-Anlage zur Anwendung gelangende Verfahren basiert im wesentlichen auf der bewährten TBP-Extraktion, der als HTR-spezifische und technologisch neuartige Head-End-Stufe die Wirbelschichtverbrennung von Brennelementgraphit vorge-schaltet ist (s. Kap. 5.1.2.1).

Im einzelnen kommen folgende Grundoperationen zur Ausführung (Abb. 57).

- Zerkleinern der kugelförmigen Brennelemente in einer Hammer-mühle
- Verbrennen von Matrixgraphit und PyC-Partikelbeschichtung mit Sauerstoff
- Abtrennen von flüchtigen radioaktiven Stoffen aus dem Ver-brennungsabgas
- Auflösen des Brenn- und Brutstoffes in  $F^-$ -katalysierter Salpetersäure
- Einstellen der Prozeßlösung auf Extraktionsbedingungen
- Klären von Prozeß- und Speiselösung
- Trennen von Thorium und Uran von den Spaltprodukten und voneinander durch Flüssig-Flüssig-Extraktion mit TBP/n-Dodecan
- Aufkonzentrieren der Uranproduktlösung
- Reinigen und Rückführen des Extraktionsmittels
- Aufkonzentrieren und Rezyklieren von Prozeßsäure
- Abtrennen von nitrosen Gasen und flüchtigen radioaktiven Stoffen aus dem Auflöser-, Verdamper- und Behälterabgas.

Die JUPITER-Anlage enthält somit alle zur Demonstration der Basistechnologie der HTR-Wiederaufarbeitung notwendigen Ver-fahrenseinheiten. Darüber hinaus wurde insbesondere der Ex-traktionsteil sehr flexibel gestaltet, um die für die Fest-legung eines experimentell abgesicherten Referenzfließbildes notwendige Erprobung mehrerer Prozeßvarianten zu ermöglichen.







Aufstellungsort der Anlage sind die Heißen Zellen der KFA. 1979 wurden thermische Funktionsteste mit dem HEAD-END-Teil durchgeführt [88]. 1980 wurde beschlossen, den HEAD-END-Teil auch für die Verarbeitung von LEU-Brennelementen umzurüsten.

Literatur: [88,64,108,120,121,122,123].

#### 5.5.2 Vorhaben VENUS

Das Vorhaben VENUS umfaßte Planung, Bau und Betrieb einer kalten Prototyp-Anlage für den HEAD-END-Verbrennungsprozeß der Wiederaufarbeitung von HTR-Brennelemente. VENUS steht als Kennwort für "Verbrennung von natururanhaltigen HTR-Brennelementen und Separation der Partikeln". In dem Projekt VENUS wurde zum ersten Mal eine Wiederaufarbeitung von Brennelementen mit Brennstoff des Zwei-Partikel-Konzeptes vorgesehen, daneben aber auch weiterhin die Wiederaufarbeitung von Brennelementen mit Brennstoff in Form von Mischoxid-Partikeln.

In dieser Anlage sollte der fernbediente Betrieb demonstriert werden, da die sichere Beherrschung der Remote-Technik die Voraussetzung für den späteren Bau einer heißen Prototyp-Anlage darstellt.

Auf der Basis vorgegebener Randbedingungen wurden das Verfahren sowie die Maschinen- und Apparatechnik geplant [109]. Damit war der erste Zwischenschritt in Richtung auf den Bau der kalten Prototyp-Anlage VENUS abgeschlossen.

In die Planungsunterlagen sind die Ergebnisse begleitender, in der KFA und der NUKEM durchgeführter F+E-Untersuchungen eingeflossen. Die Planungsunterlagen umfassen die folgenden wesentlichen Detailunterlagen

- Verfahrensbeschreibung,
- Verfahrensfließbild,
- R+I-Fließbild,
- Bilanz- und Auslegungsdaten,
- Störfallanalyse,
- Aufstellungsplan,
- Leistungsverzeichnis.

Da die Planungen auf das ferne Ziel einer industriellen Wiederaufarbeitungsanlagen zu orientieren waren, war es notwendig, zuerst die Anlagenstruktur einer solchen Anlage unter Berücksichtigung der Erfordernisse von Betrieb, Wartung und Reparatur zu konzipieren.

Die VENUS-Anlage war für den max. Brennelement-Durchsatz ausgelegt, dieser sollte

für Blöcke	:	ca.	1 BE/h	und
für Kugeln	:	ca.	545 BE/h	betrugen.

Das Verfahren verlangte eine ununterbrochene Betriebsweise. Mit einer geforderten Verfügbarkeit von 200 d/a ergibt sich damit ein jährlicher Durchsatz

für Blöcke	:	ca.	4.800 BE/a	und
für Kugeln	:	ca.	2.600.000 BE/a.	

Die Größe einer VENUS-Einheit wäre ausreichend für die Entsorgung von Anlagen mit einer Leistung von 5000 MWe, so daß für eine große, wirtschaftlich arbeitende Wiederaufarbeitungsanlage mehrere Betriebseinheiten vom Typ VENUS parallel betrieben werden müßten.

Referenz-Brennelemente waren das Kugelbrennelement mit Misch-oxid-Partikeln und das Block-Brennelement mit FEED-BREED-Partikeln.

Die wesentlichen Daten für die verfahrenstechnische Auslegung waren

- Reaktordurchmesser
  - Haupt-Wirbelschichtreaktor 550 mm
  - Nach-Wirbelschichtreaktor 200 mm
- Nenndurchsatz der C-Verbrennung 110 kg/h
- Nenndurchsatz an Schwermetall
  - BE-Block, FEED (Natururan) 1 kg/h
  - BREED (Thorium) 9 kg/h
- BE-Kugel 6,2kg/h.

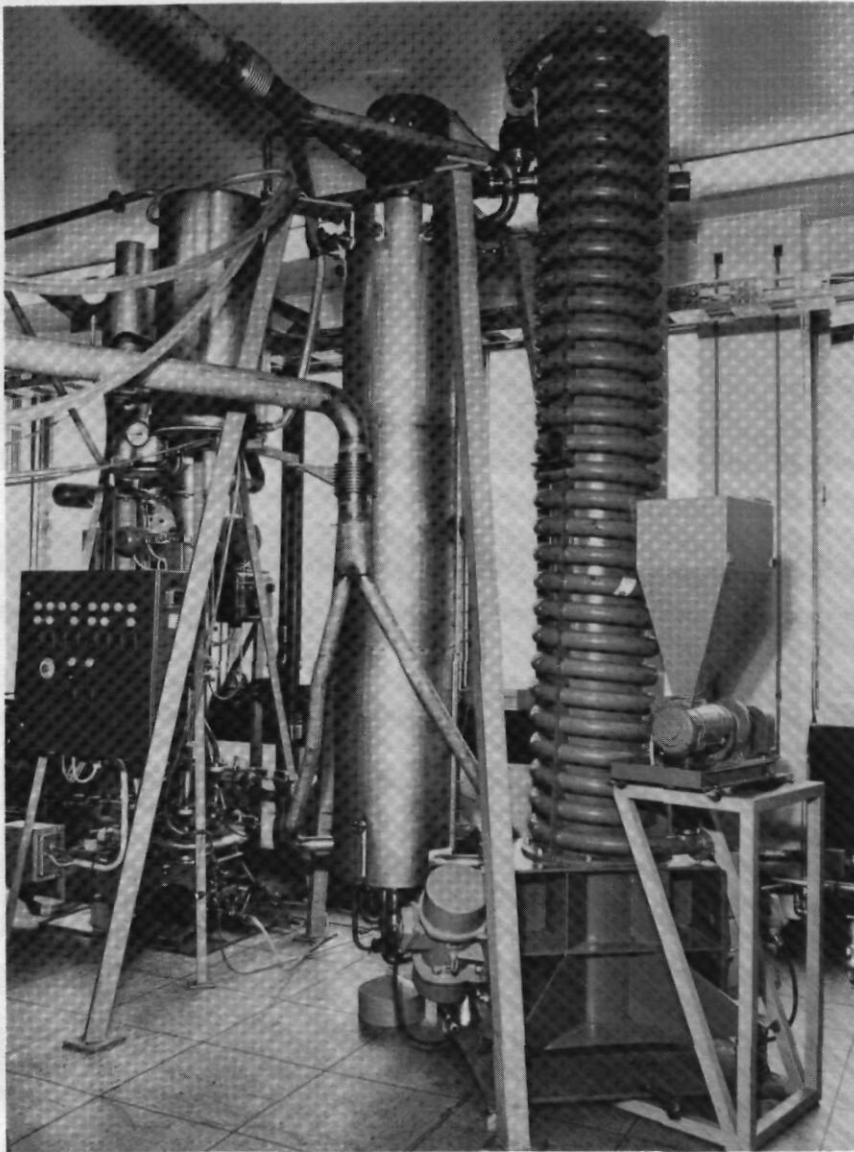


Abb. 58: Laboraufbau des VENUS-Modellreaktors

- 1) Feststoffbehälter für Mahlgut
- 2) Schwingförderer
- 3) WSR 300 (Hauptverbrennung)
- 4) Abgaskühler
- 5) Staubreinigung
- 6) Staubrücksführsystem

Das Vorhaben wurde nach einer Zusammenstellung der Planungsunterlagen 1978 eingestellt.

Literatur: [61,62,109,110,111,112,113,153].

### 5.5.3 Vorhaben ARTHUR

Zwischen 1971 und 1975 wurden gemeinsam vom Bundesministerium für Forschung und Technologie, den Kernforschungszentren und der Industrie Überlegungen angestellt, eine Prototypanlage zur Wiederaufarbeitung von Hochtemperaturreaktor (HTR)-Brennstoffen am Standort der Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe (WAK) zu errichten. Die Anlage sollte für eine zu bedienende Reaktorleistung von 5000 MWe ausgelegt werden.

Der Bau eines Prototyps in der Bundesrepublik Deutschland war eine von mehreren Möglichkeiten, in der Übergangsphase den Brennstoffkreislauf zu schließen. Eine Variante war die deutsche Beteiligung am Bau von Prototypen im Ausland im Rahmen einer internationalen Kooperation.

Für die Errichtung einer Prototypanlage zur HTR-Wiederaufarbeitung wurden prinzipiell zwei Möglichkeiten betrachtet: Umbau der WAK (THOREX-WAK) oder Neubau.

Für das heiße HEAD-END beider möglichen Anlagen sollten die Erfahrungen aus dem Projekt VENUS einfließen.

Die Aktivitäten zum Bau einer heißen prototypischen Wiederaufarbeitungsanlage für HTR-BE wurden unter dem Vorhaben ARTHUR zusammengefaßt. Die Abkürzung ARTHUR steht für Arbeitsgemeinschaft Reprocessing Thorium und Uran.

Literatur: [104].

### 5.5.4 Projekte JPHF und JFPD

#### JPHF

Auf der Basis eines Kooperationsvertrages zwischen den USA und der Bundesrepublik Deutschland [126] werden Teile der nationalen Forschungsprogramme zur Entwicklung der HTR-Techno-



Abb. 59: WSR 492, Versuchsaufbau zur Untersuchung des Wärmeübergangs in Überdruckwirbelschichten.



logie gemeinsam durchgeführt. Eines der gemeinsamen Ziel ist die Schaffung von baureifen Unterlagen für eine gemeinsame Prototyp-HEAD-END-Anlage. Dieses Projekt, genannte JPHF (Joint Prototyp-HEAD-END Facility), sieht die Verarbeitung von sowohl US-Blockbrennelemente als auch deutscher Kugelbrennelemente vor.

Bestandteil des JPHF-Projektes waren Großversuche mit Kugelbrennelementen in der kalten Pilotanlage der GAC in San Diego (1980).

Die Planung, Durchführung und Auswertung dieser Versuche und weiterer Versuche mit LEU-Brennelementen in 1981 sind unter dem Vorhaben JFPD zusammengefaßt und koordiniert.

Literatur: [127,137,138].

#### JFPD (Joint-Fuel-Processing-Demonstration)

In zwei Großversuchen sollte 1980 demonstriert werden, daß in einer HEAD-END-Anlage sowohl Kugel- als auch Blockbrennelemente aufgearbeitet werden können. So wurden im Februar und Oktober 1980 11.000 unbestrahlte kugelförmige Brennelemente in einem Versuchsstand der GAC aufgearbeitet. An diesem Vorhaben waren auf amerikanischer Seite Mitarbeiter der GAC und des ORNL, auf deutscher Seite Mitarbeiter der KFA-Jülich, der Firmen NUKEM und HOBEG beteiligt. Ein vereinfachtes Verfahrensfließbild der GAC-Anlage zeigt die Abb. 60.

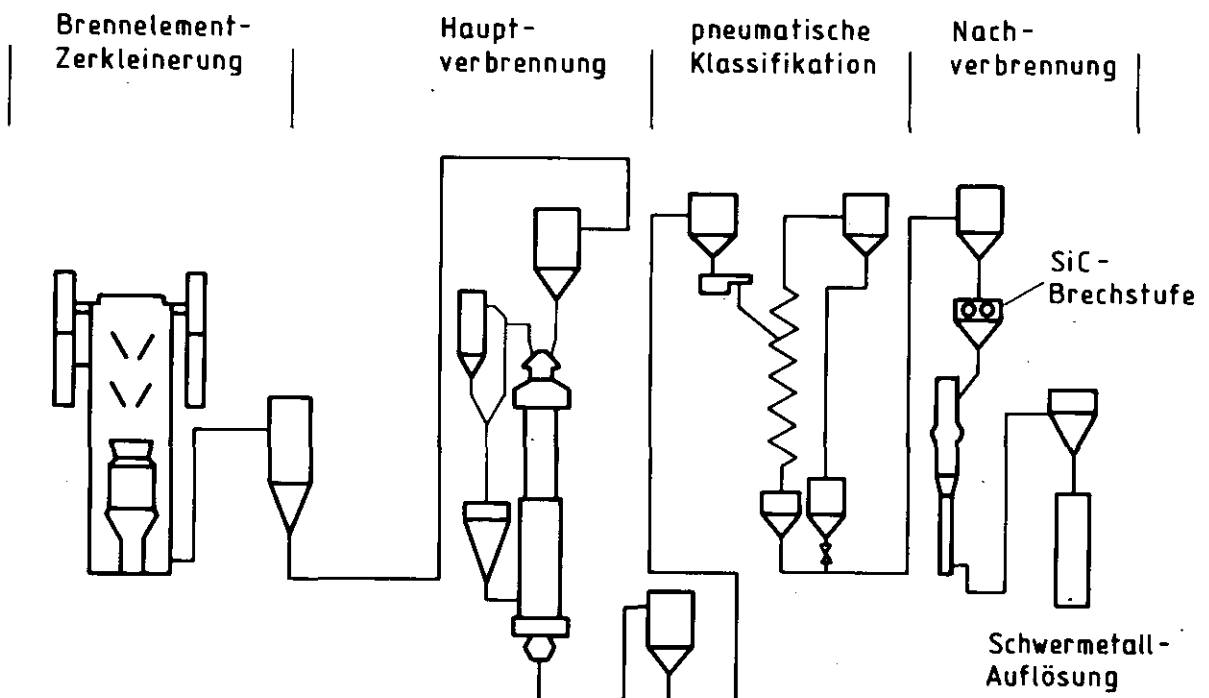


Abb. 60: Verfahrensfließbild der GAC-Anlage

Die Versuchsergebnisse lassen sich wie folgt zusammenfassen [118]:

Die Zerkleinerung der Kugelbrennelemente erfolgte in der Eingangsstufe, die aus zwei Backenbrechern, einer Doppelwalzenmühle und einem Siebschritt mit Nachzerkleinerung des Überkorns besteht. Das erzielte Durchschnittskorn hatte einen Durchmesser von 2,7 mm, wobei der Feinanteil  $< 250 \mu\text{m}$  etwa 7 Gew. % und der Partikelbruch zwischen 16,7 und 21,2 Gew. % betrug. Die Durchsatzleistung wurde mit 200 Kugelbrennelementen pro Minute festgestellt.

Für den pneumatischen Transport der zerkleinerten Kugelbrennelemente mit Saugluft ermittelte man: Förderluftgeschwindigkeit 30 m/sec, Förderkapazität 3 kg/min bei einem Beladungsgrad von 0,75 Feststoff/kg Luft.

Der Schwerpunkt der Versuche lag auf der Wirbelschichtverbrennung des Matrixgraphits im Hauptwirbelschichtreaktor, der einen zylindrischen Brennraumdurchmesser von 0,4 m und eine Bauhöhe von etwa 7 m hat. Nach Vortests, die geringfügige Änderungen erforderten, folgten drei Hauptversuche mit den deutschen Kugelbrennelementen.

Der erste Testlauf von etwa 5 h Betriebsdauer zeigte, daß ein Betrieb des Brenners nur mit zerkleinerten Kugelbrennelementen als Anfahrwirbelschicht nicht möglich war, da mehr Feinstaub ausgetragen wurde als rezykliert und verbrannt werden konnte. Die vorhandenen Speichervolumen des Feinstaubbunkers und der Filterkammer waren daher in kurzer Zeit gefüllt. So war die mögliche Betriebszeit weitgehend von dem vorhandenen Speichervolumen für den Feinstaub abhängig. Eine vollständige Verbrennung des ausgetragenen Feinstaubes war nicht möglich. Daher entschied man, bei den folgenden Versuchen als Anfahrwirbelschicht eine fast kohlenstofffreie Partikelschüttung zu verwenden.

Der zweite Testlauf wurde mit 280 kg  $\text{ThO}_2$ -Partikeln angefahren und dauerte rund 25 h, wobei konstante Betriebsbedingungen über 14 h erzielt werden konnten. Aber auch bei diesem Versuch akkumulierte sich der Feinstaub, wenn auch langsam, in den Speicher-

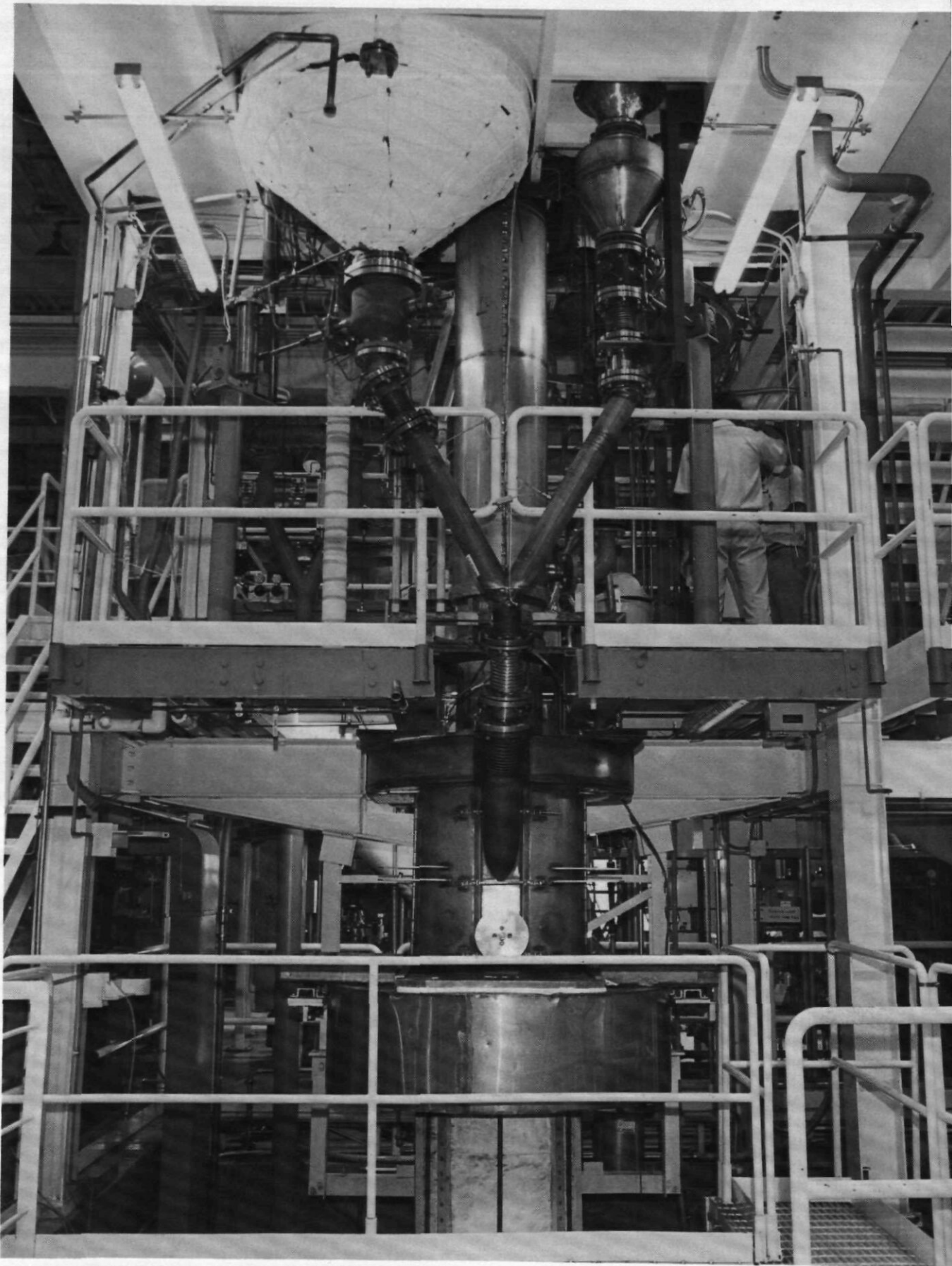


Abb. 61: Hauptwirbelschichtreaktor der GAC-Anlage (primary-burner)  
(mit Genehmigung der GAC, San Diego)

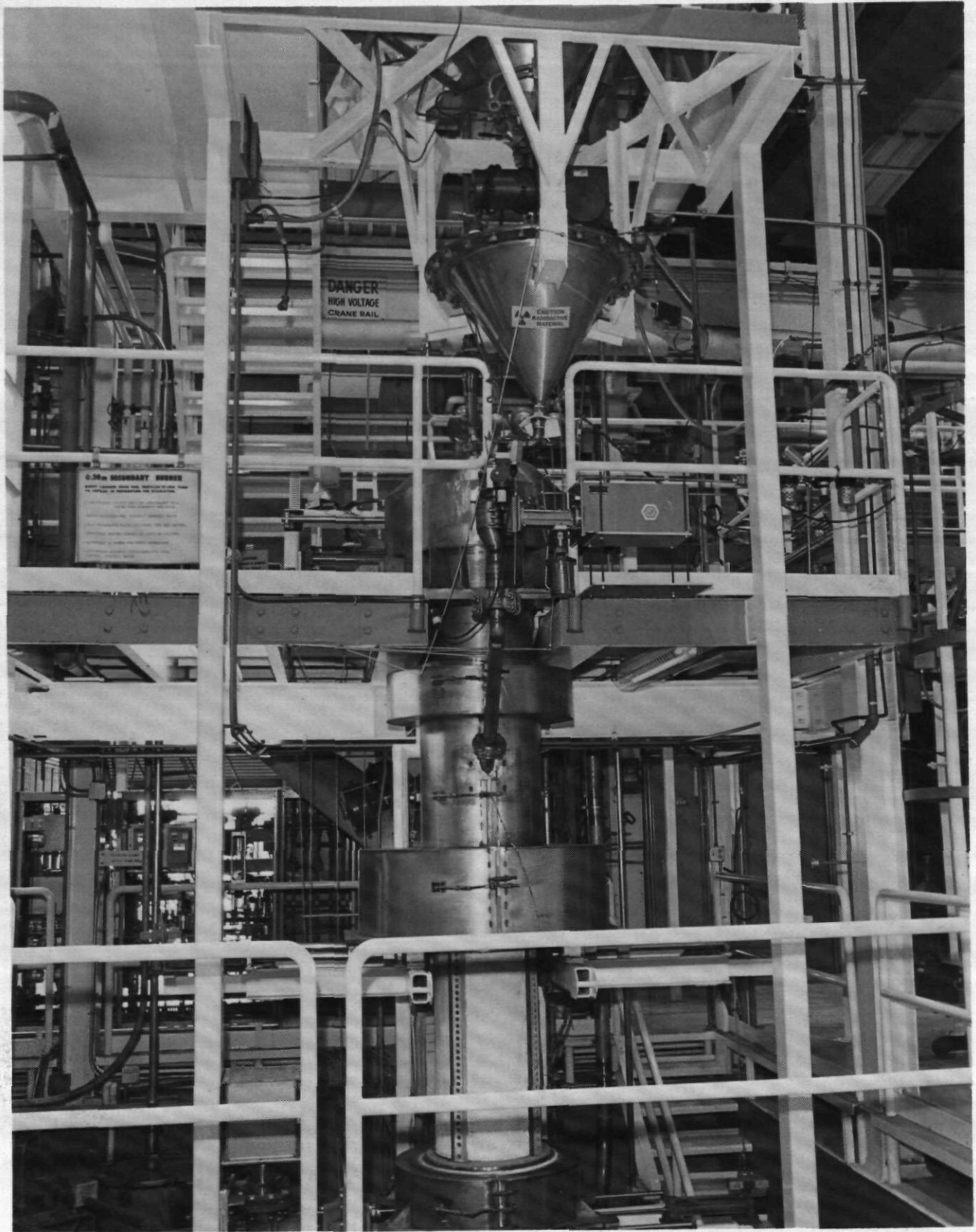


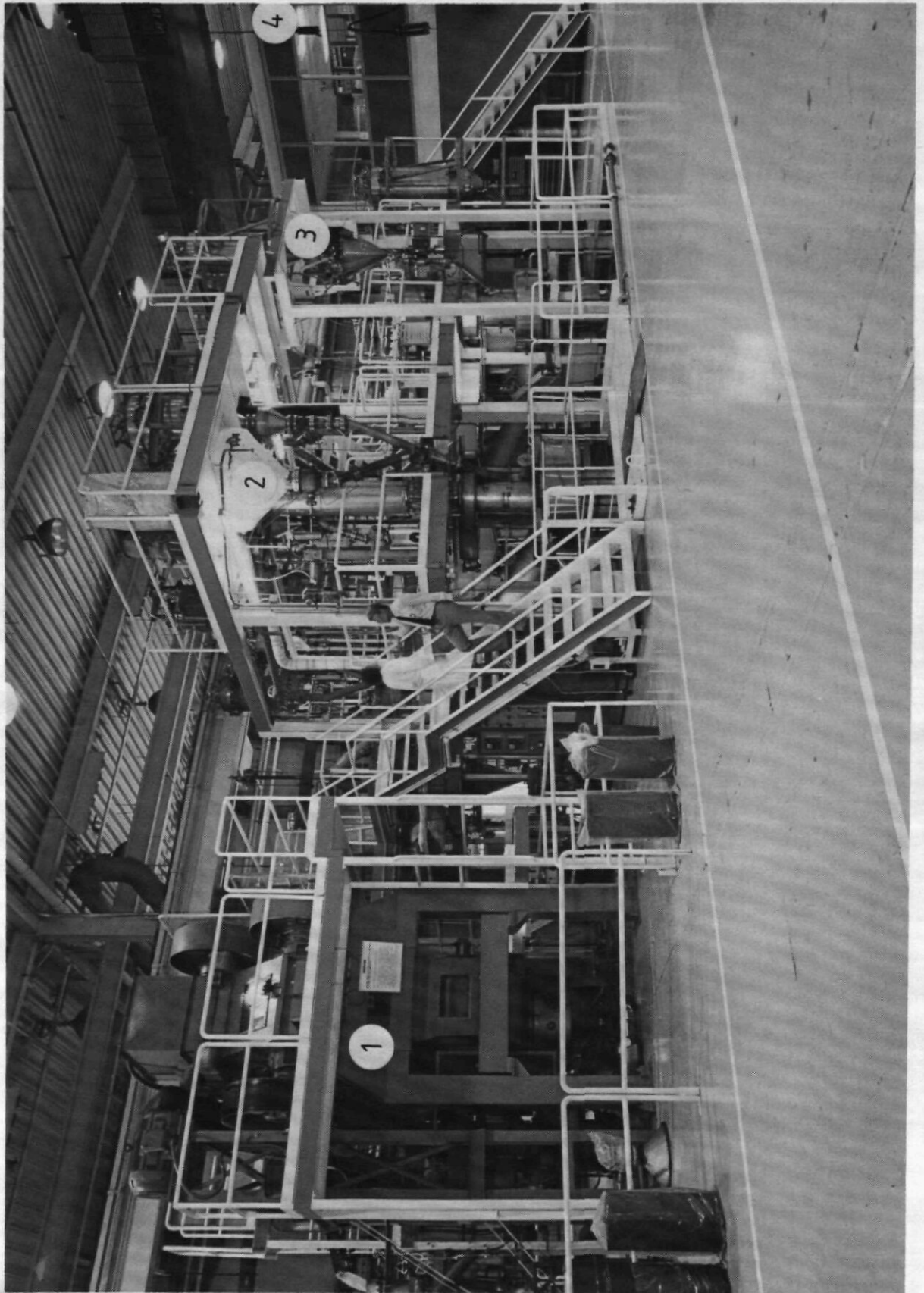
Abb. 62: Nachverbrennungsreaktor (secondary burner) der GAC-Anlage,  
(mit Genehmigung der GAC, San Diego)



Abb. 63:

Gesamtansicht der  
GAC-Anlage

- 1) UNIFRAME
- 2) Primary burner
- 3) Secondary burner
- 4) Steuer- und  
überwachungsraum  
(mit Genehmigung  
der GAC)



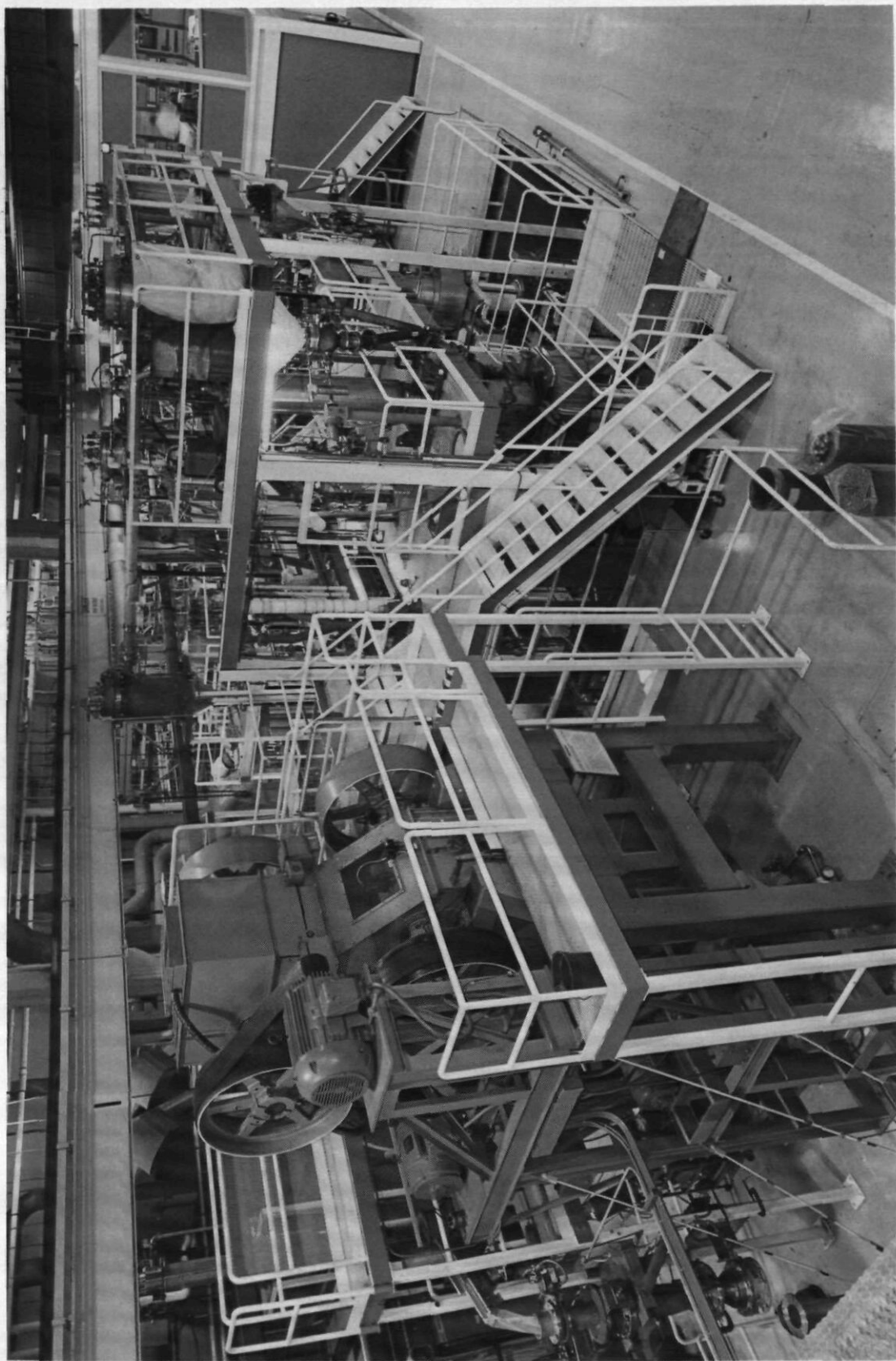


Abb. 64: Gesamtansicht der GAC-Anlage (mit Genehmigung der GAC, San Diego)

behälter. Eine Betriebstemperatur in der Wirbelschicht unter  $950^{\circ}\text{C}$  war bei konstanten Betriebsbedingungen nicht zu erreichen.

Der dritte Testlauf wurde - wie der vorangegangene - mit einem kohlenstoffarmen Partikelbett angefahren. Die gesamte Testlaufdauer betrug 30 h. Es wurden mehrere Parameterstudien durchgeführt. Das wichtigste Ergebnis dieses Versuches war, daß durch Verringerung der Fluidisierungsgeschwindigkeit von 1,1 m/sec auf 0,86 m/sec die Brennverhältnisse stabilisiert werden konnten bei gleichzeitiger Beibehaltung einer noch ausreichenden Fluidisierung. Hervorzuhebende positive Effekte waren:

- Absenkung der Betriebstemperatur auf  $900^{\circ}\text{C}$ ,
- kein Sauerstoff im Abgas,
- geringerer Staubaustrag
- und schließlich Möglichkeit reiner Staubverbrennung.

Besonders die Verringerung des zu rezyklierenden Feinstaubes trug zur Stabilisierung der Brennverhältnisse bei. Einmal wurde dadurch weniger Wärme dem Gesamtsystem entzogen und zum anderen durch die erhöhte Verweilzeit eine bessere Brennrate des Feinstaubes erzielt bei gleichzeitig verringertem Feinstaubaustrag mit dem Abgas. Die Brennrate betrug unter den genannten Betriebsbedingungen 600 g C/min.

Sowohl das anschließende Zerkleinern der SiC-Schicht der Partikeln aus dem Hauptwirbelschichtreaktor als auch die Nachverbrennung der inneren Kohlenstoffschichten sowie die Auflösung der Schwermetallkerne verliefen problemlos.

Aus diesen Ergebnissen wurden folgende Schlußfolgerungen gezogen [118]:

- Eine einheitliche Head-End-Wiederaufarbeitungsanlage für kugel- und blockförmige HTR-Brennelemente mit unterschiedlichem Brennstoffkonzept ist möglich.
- Zum Anfahren des Hauptwirbelschichtreaktors benötigt man, zumindest bei Einsatz von zerkleinerten Kugelbrennelementen, eine fast kohlenstofffreie Partikelschüttung.

- Die Einspeisung des rezyklierten Feinstaubs sollte unter die Wirbelschicht oder zumindest in die Wirbelschicht erfolgen.
- Der Brennraum sollte konisch nach oben hin erweitert werden, um so eine Fluidisierungsverbesserung für das vorhandene, sehr breite Kornspektrum zu erreichen.

Literatur: [28,59,118,119,138].

#### 5.5.5 AVR-VI-Vorhaben

Um den Nachweis zu erbringen, daß die Prozesse und Anlagen der LWR-Wiederaufarbeitung im naßchemischen Teil auch für LEU-HTR-Brennelemente benutzt werden können, soll die Nachladecharge AVR-VI (ca. 2500 bestrahlte Brennelemente mit BISO-beschichteten Partikeln) des Jülicher AVR-Reaktors in einem Laborgroßversuch bis zur Speiselösung verarbeitet und damit als Ausgangslösung für einen Demonstrationsversuch (PUREX-Verfahren) bereitgestellt werden.

Unter AVR-VI-VBT (VBT: Verbrennungsteil) ist die HEAD-END-Behandlung zu verstehen. Es sind also hierunter alle Aktivitäten zur Auslegung, zum Bau und zum Betrieb des Verbrennungsteils (ohne Abgasbehandlung) zusammengefaßt. Ziel dieses Vorhabensabschnittes ist, durch Wirbelschichtverbrennung eine C-freie Schwermetallasche ( $C_{\max}$ -Anteil < 1,1 %) herzustellen, die dann wie oben beschrieben weiterbehandelt bzw. daraufhin untersucht werden soll, ob sie mit der LWR-WAA-Technologie weiterverarbeitet werden kann.

Die Verbrennung von LEU-Brennelementen mit BISO-beschichteten SM-Kernen ist für das Verbrennungs-HEAD-END als schwierigster Fall anzusehen. Beherrscht man die Behandlung dieses Brennstoffsystems, dann ist im Verbrennungs-HEAD-END das Referenz-LEU-System mit TRISO-Partikeln erst recht durchführbar. Grund für diese Aussage ist einmal die Tatsache, daß die SM-Kerne während der Hauptverbrennung ( $C_{\text{Überschuß}} >> 90 \%$ ) zu einem feinen Pulver zerfallen können (die Verbrennung "stoppt" hier nicht an der SiC-Hülle) und zum anderen die Schwierigkeit in der Beherrschung der Verbrennungswirbelschicht wegen des Fehlens eines Fließmittels und eines konstanten Wärmeträgers, der bei TRISO be-



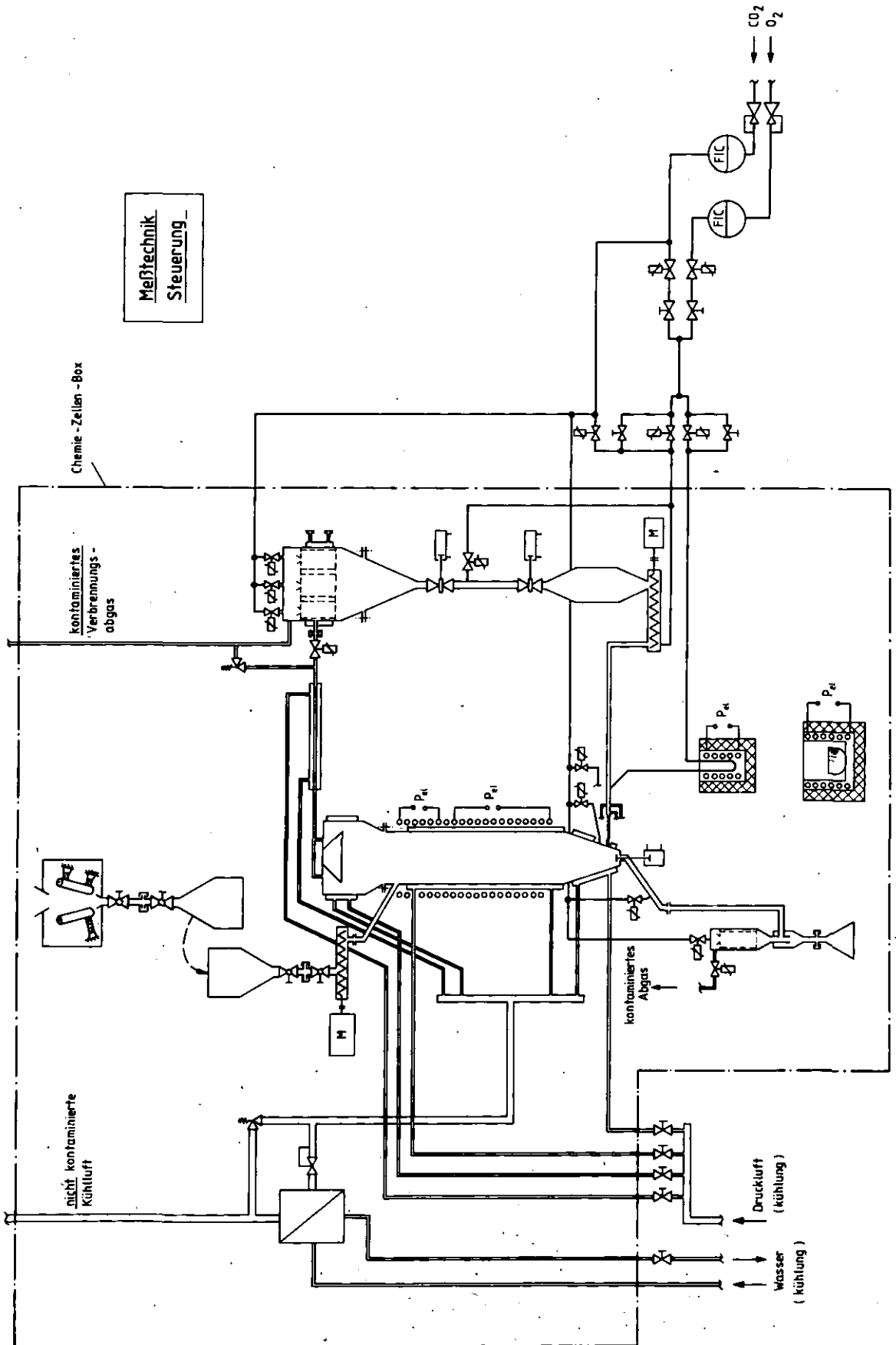


Abb. 65: Verfahrensfließbild zum AVR-VI-VBT-Aufbau

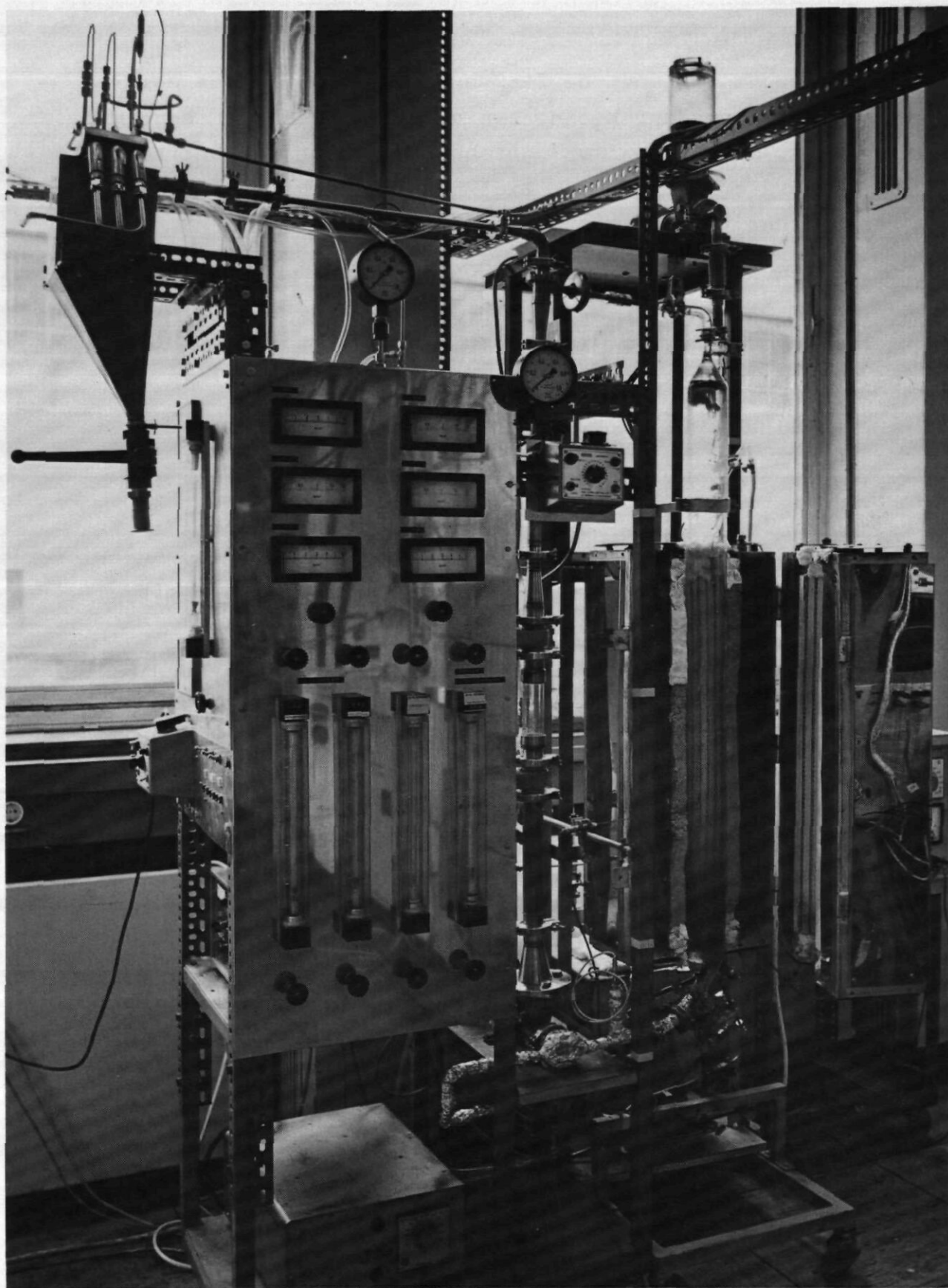


Abb. 66: Versuchsstand mit WSR 80 (Quarzglas) zur Erprobung von Bauteilen für AVR-VI-VBT

ladenen Elementen vorhanden ist (= SiC-umhüllte Partikeln u. SiC-Bruch).

Die Planungen wurden Ende 1980 an dem VBT-Abschnitt aufgenommen und waren durch einen vorgegebenen Zeitplan bestimmt. Er sieht vor, daß Anfang 1983 der heiße Verbrennungsbetrieb aufgenommen werden soll. Dieses Ziel ist aus technischer Sicht realisierbar.

Einige Kenndaten zum Verbrennungsteil:

- Die Verbrennung ist für einen Maximaldurchsatz von 30 BE/d ausgelegt, dabei wurde von einer niedrigen spezifischen Verbrennungsleistung von ca.  $20 \text{ g C/h cm}^2$  ausgegangen. Der Verbrennungsreaktor ist ohne technische Änderungen auch mit niedrigen Verbrennungsleistungen mit  $\dot{M}_C \leq 1,5 \text{ BE/h}$  betreibbar. Störfälle durch Staub, Gas oder Überdruck sind durch Auslegung und Bauart ausgeschlossen. Eine Gefahr durch Graphit-Staub-Explosion ist nicht gegeben [139,140,141].
- Der Verbrennungsraum hat einen Innendurchmesser von  $D_{\text{WSR}} = 94 \text{ mm}$  ( $\rightarrow \text{WSR } 94$ ) und ist mit einer Ringspalt-außenwandkühlung ( $b = 4 \text{ mm}$ ) ausgerüstet. Als Kühlmedium ist Luft vorgesehen.
- Die vorgesehenen Betriebsdaten lauten für  $\theta \leq 950^\circ\text{C}$  und für  $P_{\text{abs,max}} \leq 1,5 \text{ bar}$  ( $P_{\text{ü,max}} \leq 0,5 \text{ bar}$ ).
- Der WSR 94 wird mit einer elektrischen Mantel-Widerstandsheizung auf Zündtemperatur gebracht. Er ist auch während des Betriebes beheizbar.
- Für das Staubabscheide- und -rückführsystem stehen zwei Systeme zur Auswahl, beide haben als Grundelemente rückblasbare Filterkerzen, die entweder
  - a) brennraumintern oder
  - b) brennraumexternangeordnet sein können.

Im ersten Fall erübrigt sich die Staubrückführung. Unbekannt sind hier die Temperaturverträglichkeit und da-

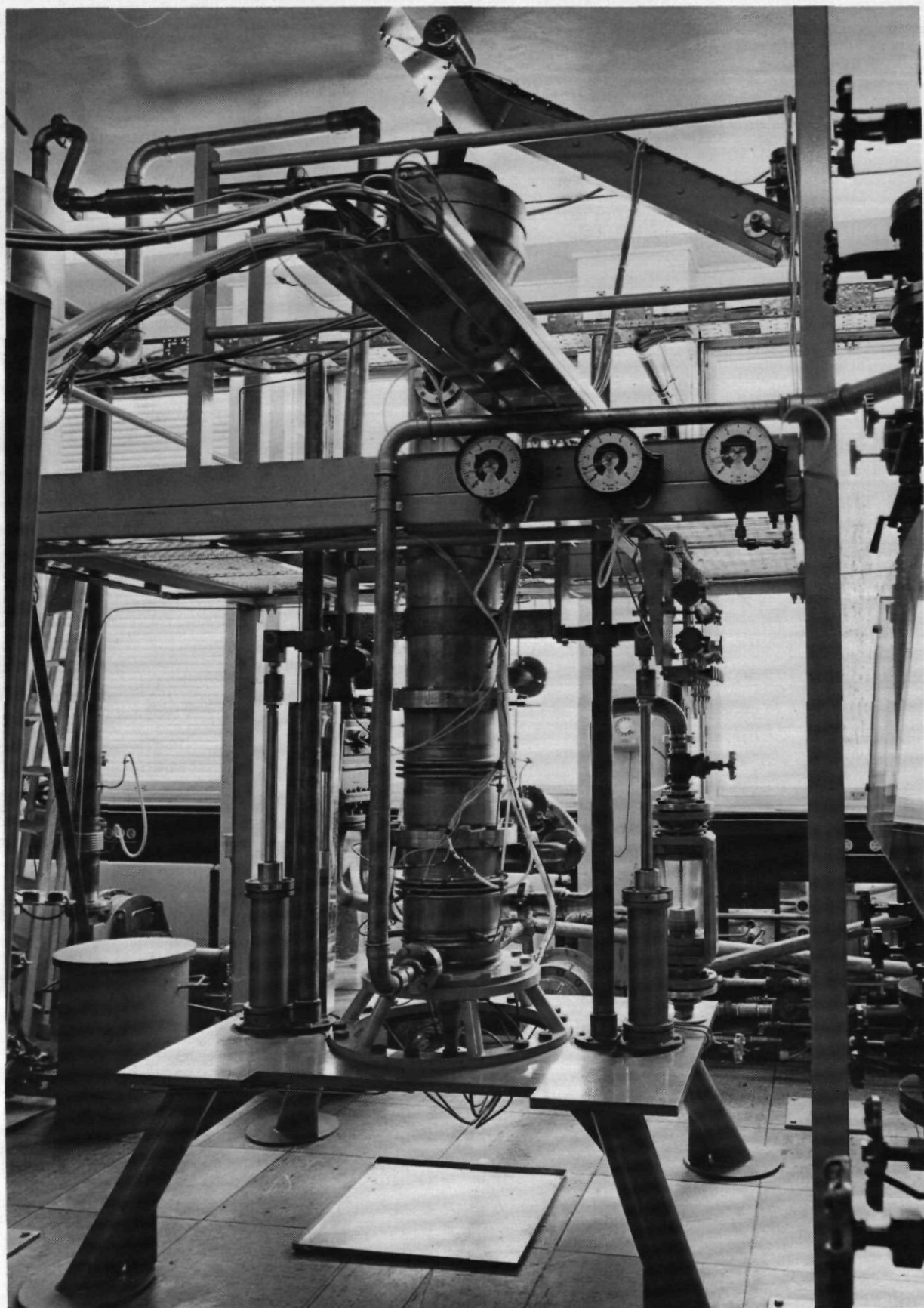


Abb. 67: Versuchsstand mit WSR 200 (geplante Inbetriebnahme 1981)

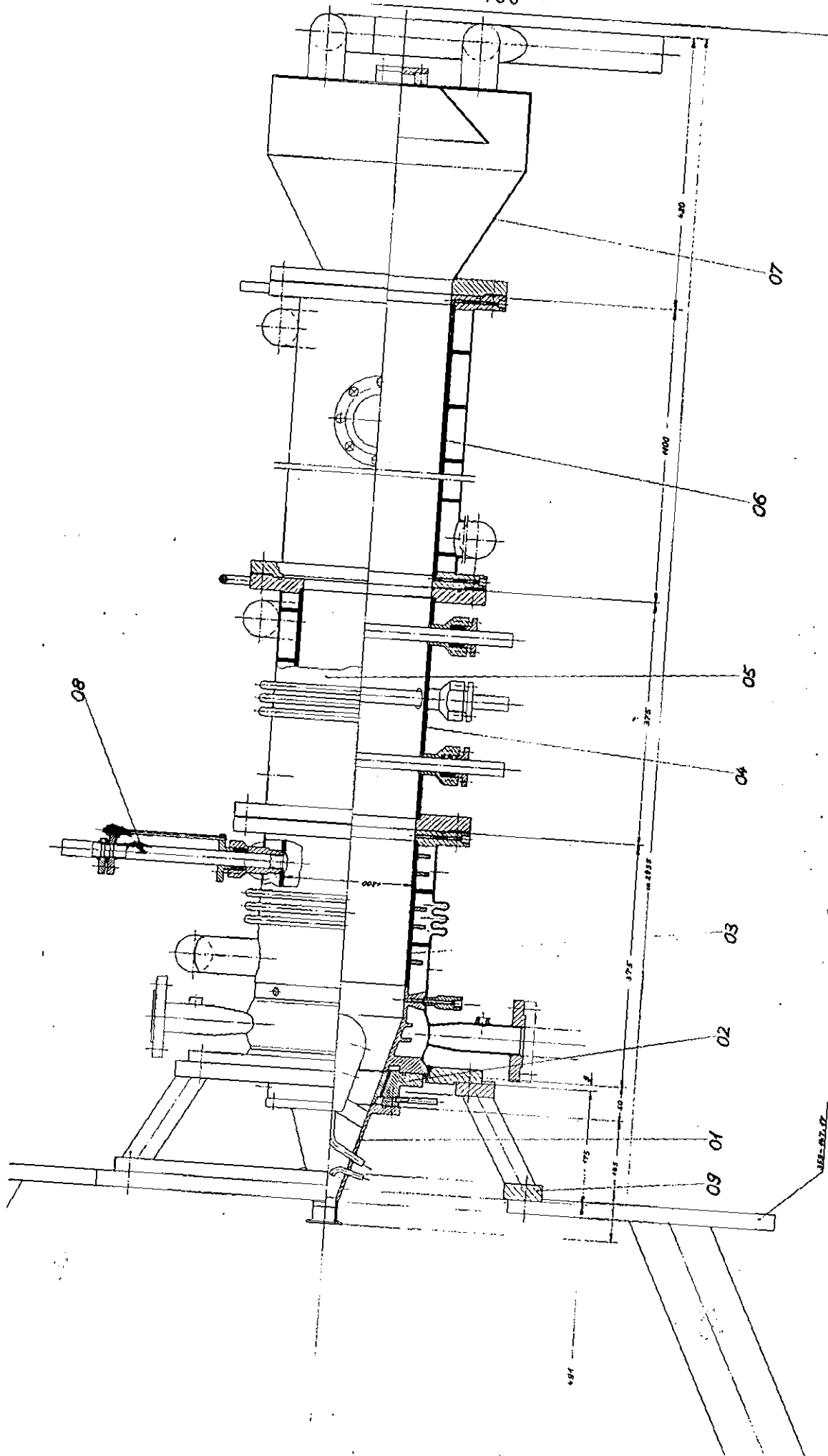


Abb. 68a: Schnitt durch den WSR 200.



mit die Standzeiten der Filterkerzen, ferner bei Dauerbetrieb das Brennverhalten des Reaktors. Wegen der relativ großen Bauhöhe hat dieses System Chancen genutzt zu werden. Im zweiten Fall ist der technische Aufwand höher. Dieses Gesamtsystem hat aber seine Tauglichkeit bereits unter Beweis gestellt. Die Rückspeisung des Staubes erfolgt hier unterhalb der Wirbelschicht (Unterbetteinspeisung). Das Verfahrensfließbild des Verbrennungsteiles zeigt Abb. 65.

Das Quarzglasmodell zum Versuch ist in Abb. 66 gezeigt.

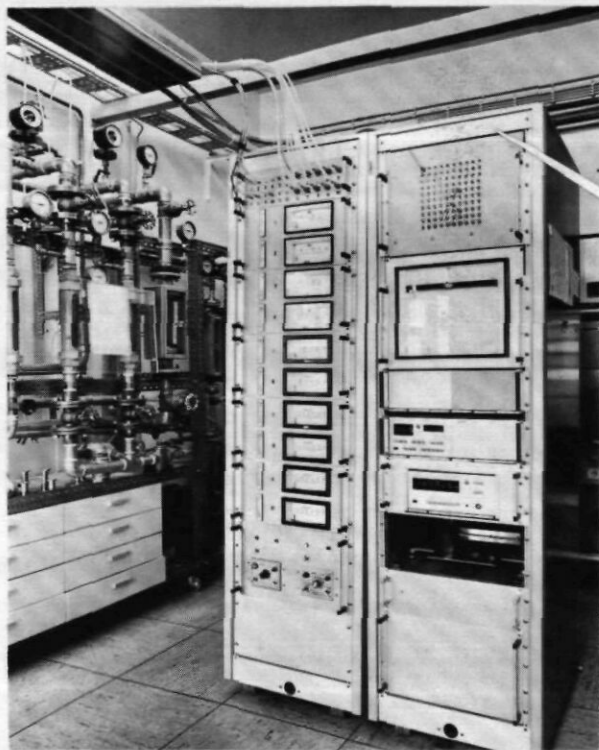
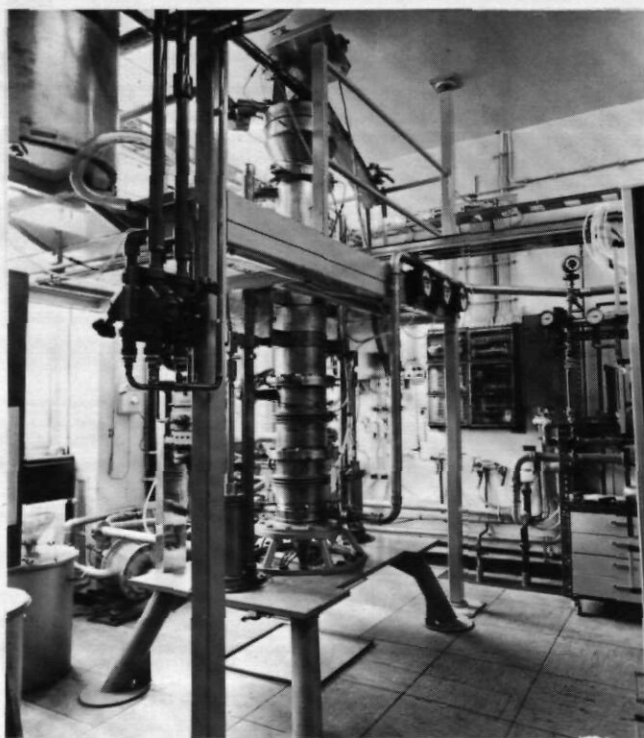


Abb. 68b: WSR 200, Seitenansicht und Meßanordnung



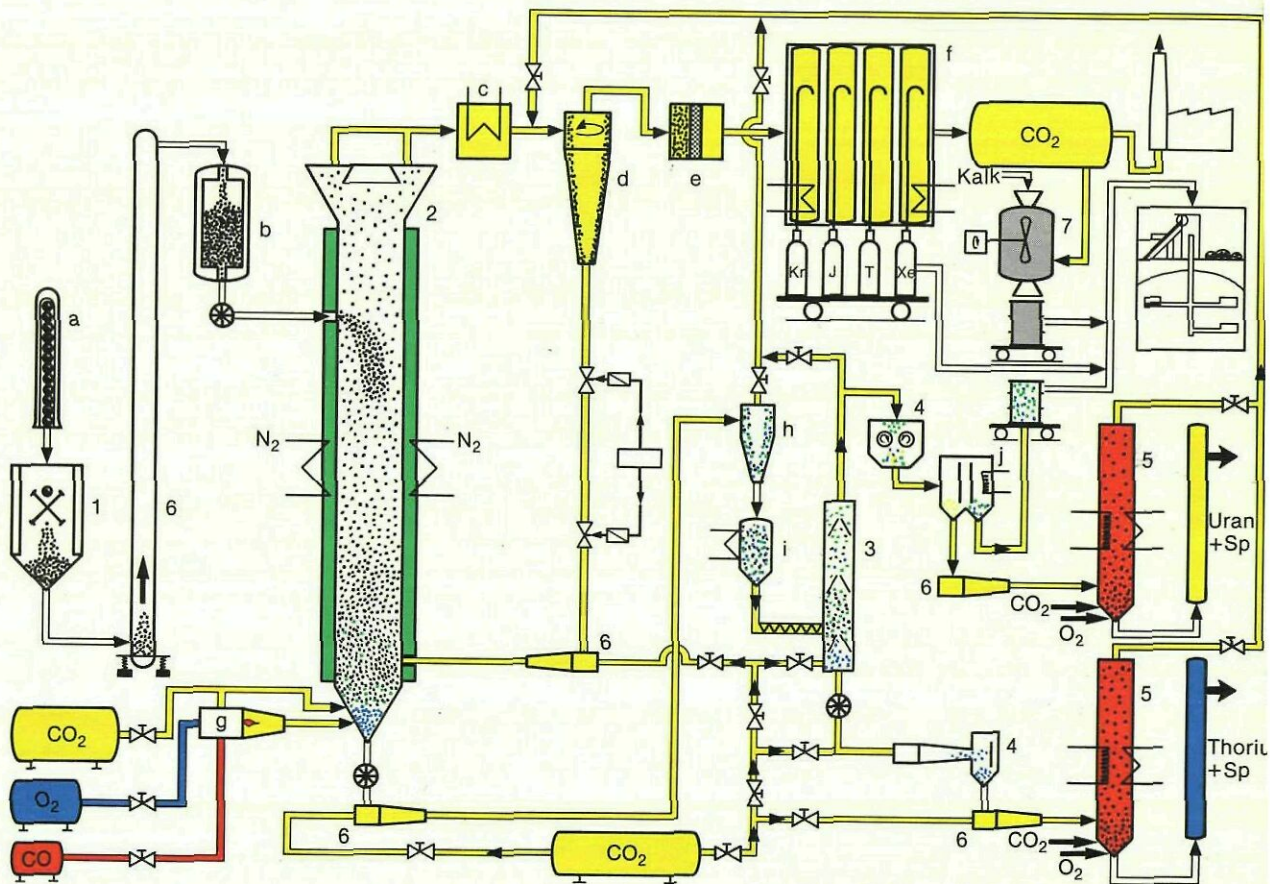


Abb. 69: Vereinfachtes Apparatefließbild des HEAD-ENDS für die Aufarbeitung eines Zweipartikelbrennstoffsystems (TRISO-TRISO): 1) Hammermühle; Brennelementzerkleinerung, 2) Hauptwirbelschichtreaktor; Graphitabtrennung durch Verbrennung, 3) Windsichter; Trennung der Uran- von den Thoriumpartikel, 4) Aufbrechen der SiC-Schicht; a) hier für Uranpartikel (oberer Strang) durch Mahlen b) hier für Thoriumpartikel (unterer Strang) durch Aufprall gegen eine Wand, in diesem Fall werden die SiC-Hüllen auch gleich abgetrennt 5) Nachverbrennungsreaktor; Abtrennung der inneren Kohlenstoffschicht durch Verbrennung 6) Fördereinrichtungen; nach 1 Schwingförderer sonst nur pneumatisch 7)  $\text{CO}_2$ -Verfestigung in  $\text{CaCO}_3$ , a) Behälter mit Kugelbrennelemente in der Annahmestation, b) Bunker für das Mahlgut, c) Wärmetauscher; für die Kühlung des Abgases, d) Fliehkraftentstauber (Zyklon); Feinstaubabscheidung mit Rücktransport des abgeschiedenen Staubes in 2, e) Feststofffilter; Feinstaubrückhaltung, f) Abtrennung von Spaltprodukten und Edelgasen aus dem Abgas, g) Startbrenner, bringt den Hauptwirbelschichtreaktor auf Zündtemperatur, h) Zyklon, scheidet Schwermetallpartikel vom Transportgas ab, i) Behälter für Schwermetallpartikel, j) Magnetscheider, trennt SiC-Hüllbruch von den Urankernen (noch kohlenstoffumhüllt).

7. LITERATURVERZEICHNIS

- [1] L.M. Ferris:  
HEAD-END Process for Graphite-Base and Carbide  
Reactor Fuels;  
Progress in Nuclear Energy Series III:  
Process Chemistry, Vol. 4, Kap. 3.2,  
New York 1969 [121-169]
- [2] H. Tischer:  
Die Kohlenstoffvergasung und die mechanische Graphit-  
trennung als mögliche Trennprozesse im HEAD-END  
einer Wiederaufarbeitungsanlage für Brennelemente  
aus Hochtemperaturreaktoren;  
KFA-ICT-IB-431/79 [April 1979]
- [3] H. Bildstein, K. Knotik:  
Untersuchungen zur Wiederaufarbeitung der Graphit-  
Karbid-Brennstoffeinsätze von Hochtemperaturreaktoren;  
Kerntechnik 8 1966 H. 3, [110-115]
- [4] E. Merz:  
Die Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen in der  
BRD, II. Wiederaufarbeitung von Uran-Thorium-  
Brennstoffen;  
Atomkernenergie 15 1970 [23-25]
- [5] E. Merz:  
Aufarbeitung bestrahlter Brenn- und Brutstoffe aus  
Thorium-Reaktoren, Entwicklung von Verfahren in  
der KFA Jülich;  
Atomwirtschaft, 13 1968 [417-421]
- [6] E. Merz:  
Zur Desintegration des Graphits durch Bildung  
elektrolytischer Graphiteinlagerungsverbindungen;  
Kerntechnik 12 1970 [341-346]



- [7] R. Böhnert, G. Kaiser, H. Pirk, U. Tillessen:  
HTR-Verbrennungs-HEAD-END  
Gegenüberstellung des Schachtofens- und Wirbel-  
schichtverfahrens;  
Jül-1152 [Januar 1975]
- [8] K. Hartmann:  
Entwicklung eines trocken-mechanischen Verfahrens  
zur Trennung zweier ungleichartiger Kornkollektive  
aus den Abbrand- und Brutpartikeln für Hochtemperatur-  
reaktoren;  
Jül-1592 [Mai 1979]
- [9] R. Schüler:  
Verbrennung von Graphit, Brenn- und Brutstoff bei der  
Wiederaufarbeitung von Hochtemperaturreaktor-Brennele-  
menten;  
Diplomarbeit, Fakultät für Maschinenwesen, Lehrstuhl  
für Reaktortechnik, RWTH-Aachen, Nov. 1972  
KFA-ICT-IB von 1972
- [10] H.M. Muller:  
Head-End-Prozesse für HTGR-Brennelemente nicht be-  
ruhend auf Trockenverbrennung des Graphits;  
NUKEM GmbH, Großauheim, NUKEM-160 [Dez. 1973]
- [11] HBK-Projekt:  
Arbeitsprogramm 1981, Loseblattsammlung  
Oktober 1980
- [12] H. Kronschnabel:  
ICT der KFA Jülich,  
mündliche Mitteilung
- [13] H.O. Witte, L.M. Ferris:  
Ball-Milling of Graphite-Base  
Reactor fuel;  
ORNL-TM-1412 [Feb. 1966]

- [14] J.H. Goode, J.R. Flanary:  
Hot-Cell Evaluation of the GRIND-LEACH Process,  
II. Recovery of Uranium and Thorium from Irradiated  
Pyrolytic-Carbon-Coated Sol-Gel Thoria-Urania  
Particles;  
ORNL-4213 [March 1968]
- [15] C.D. Scott:  
Recovery of Uranium from Graphite Fuels by  
Oxidation and Fluorination II;  
ORNL-3456 [Jan. 1964]
- [16] L.E. McNeese, C.D. Scott:  
ORNL-3434 [1963]
- [17] R.E. Blanco, G.I. Cathers, L.M. Ferris, T.A. Gens,  
R.W. Horton, E.L. Nicholson:  
Processing of Graphite Reactor Fuels Containing  
Coated Particles and Ceramics;  
Nuclear Science and Engineering, 20  
1964 [13-22]
- [18] L.P. Hatch:  
BNL-Log. Nr. C-11355 [January 1964]
- [19] E. Merz:  
Die Zerstörung der Graphit-Matrix durch Caesium-  
Metall;  
Nukleonik, 11 1968 [38-44]
- [20] Arbeitsgruppe "Institut für Chemische Technologie"  
E. Merz, G. Kaiser, M. Laser, H.-J. Riedel:  
Tätigkeitsbericht für das Jahr 1966, Projekt  
"Wiederaufarbeitung thoriumhaltiger Kernbrenn-  
und Brutstoffe, [1966]

- [21] Kernforschungsanlage Jülich,  
Institut für Chemische Technologie:  
Aufarbeitung thoriumhaltiger Brennelemente;  
Tätigkeitsbericht vom 1.7 - 31.12.1967  
Februar 1968
- [22] Kernforschungsanlage Jülich,  
Institut für Chemische Technologie:  
Aufarbeitung thoriumhaltiger Brennelemente;  
Tätigkeitsbericht für das 1. Halbjahr 1968  
(1968)
- [23] Kernforschungsanlage Jülich,  
Institut für Chemische Technologie:  
Aufarbeitung thoriumhaltiger Brennelemente;  
Tätigkeitsbericht für 2. Halbjahr 1968, (1969)
- [24] Kernforschungsanlage Jülich,  
Institut für Chemische Technologie:  
Aufarbeitung thoriumhaltiger Brennelemente;  
Tätigkeitsbericht für 1. und 2. Halbjahr 1969 und  
1. und 2. Halbjahr 1970
- [25] Farbenfabriken Bayer AG, Farbwerke Hoechst AG,  
Fried. Krupp GmbH, Gelsenkirchener-Bergwerks-  
Aktiengesellschaft, Kali-Chemie Aktiengesellschaft,  
Nukem, Nuklear-Chemie und -Metallurgie GmbH, Kern-  
forschungsanlage Jülich:  
Wiederaufarbeitungs-Studie,  
Zusammenfassender Bericht für den 1. Projektabschnitt  
1966-1968 [1969] 18
- [26] Kernforschungsanlage Jülich,  
Institut für Chemische Technologie:  
Aufarbeitung thoriumhaltiger Brennelemente;  
Zusammenfassender Bericht für den 1. Projekt-  
abschnitt 1966-1968, Feb. 1969

- [27] B.R. Dickey, G.W. Hogg, W.B. Palmer, J.A. Rindfleisch,  
M.K. Valentine:  
Use of Fluidized-Bed Technology in HTGR Fuel  
Reprocessing;  
Allied Chemical Corporation, Idaho Falls, Idaho,  
USA, VTB 7447/133
- [28] F.A. Schwarz, J.B. Strand, H.E. Tischer:  
US/FRG Cooperative HTGR Programm Joint Fuel Processing  
Demonstration JFPD Preliminary Tests at General Atomic  
CO;  
San Diego, NUKEM FuE-80015/GA-A 15841/KFA-HBK-IB-3/80,  
[June 1980]
- [29] H. Tischer:  
Die Wibelschichtverbrennung des Brennelementgraphits  
im Überdruck in einer Großanlage zur Wiederaufarbeitung  
von Brennelementen aus Hochtemperaturreaktoren;  
JÜL-1574 [Feb. 1979]
- [30] F. Calori, A. Compagnone, O. Nepi, G. Orsenigo:  
An Experimental Investigation and Assessment of Re-  
processing and Refabrication of High Temperature  
Reactor Fuel,  
Part 1  
Technical and Economic Evaluation of Recovering Thorium  
and Uranium in a Central Integrated Facility for Re-  
processing and Refabrication;  
Dragon Project Report 461 [Feb. 1967]
- [31] F. Calori, A. Compagnone, O. Nepi, G. Orsenigo:  
An Experimental Investigation and Assessment of Re-  
processing and Refabrication of High Temperature  
Reactor Fuel,  
Part 2  
Drawings;  
Dragon Project Report 461 [Feb. 1967]

- [32] F. Calori, A. Compagnone, O. Nepi, G. Orsenigo:  
An Experimental Investigation and Assessment of Re-  
processing and Refabrication of High Temperature  
Reactor Fuel,  
Part 3  
Specifications;  
Dragon Project Report 461 [Feb. 1967]
- [33] F. Calori, A. Compagnone, O. Nepi, G. Orsenigo:  
An Experimental Investigation and Assessment of Re-  
processing and Refabrication of High Temperature  
Reactor Fuel,  
Part 4  
HEAD-END-Processing for U-Th Carbide Graphite Fuel;  
Dragon Project Report 461 [Feb. 1967]
- [34] L.W. Fromm:  
Recovery of Uranium from Graphite Shapes by Electrolytic  
Graphite Disintegration in Nitric Acid;  
ORNL-238 [1949] 1OF2
- [35] H. Bildstein, K. Knotik:  
Die Verwendung oxidierender Säuregemische zum Zer-  
legen von Brennstoffeinsätzen für gasgekühlte Hoch-  
temperaturreaktoren;  
Kerntechnik 10 1968 [255-259]
- [36] G. Kleine-Vennekate:  
Erprobung und Optimierung eines neuartigen Abbürst-  
verfahrens zur mechanischen Graphit-Schwermetall-  
trennung in der Wiederaufarbeitung kugelförmiger  
Brennelemente;  
KFA-ICT-IB-467/81 [Feb. 1981]
- [37] H. Pirk, U. Tillessen:  
Kontinuierliches Verbrennungsverfahren als Head-End  
zur Aufarbeitung von Brennelementen für Hochtemperatur-  
reaktoren;  
Kerntechnik, 14 1972 [158-161]

- [38] U. Tillessen:  
Entwicklungsarbeiten zur Aufarbeitung von thorium-  
haltigen Kernbrennstoffen;  
NUKEM, Hanau, Kennzeichen St.N. 111-67, 4. Bericht  
[1969]
- [39] R. Böhnert:  
Entwicklung eines Verfahrens zur Verbrennung des  
Graphits bestrahlter Brennelemente von HTR-Reaktoren  
in einer inertstofffreien Wirbelschicht;  
Jül-1041-CT [Jan 1974]
- [40] D. Kunii, O. Levenspiel:  
Fluidization Engineering;  
John Wiley and Sons, Inc. New York, London  
Sydney Toronto [1969]
- [41] J. Beránek, K. Rose, G. Winterstein:  
Grundlagen der Wirbelschichttechnik;  
Krauskopf-Verlag, Mainz [1975]
- [42] F. Schytil:  
Wirbelschichttechnik;  
Springer-Verlag; Berlin, Göttingen, Heidelberg  
[1961]
- [43] J.F. Davidson:  
Fluidization;  
Academie Press London [1971]
- [44] Kernforschungsanlage Jülich  
Institut für Chemische Technologie,  
VAW Vereinigte Aluminium-Werke Aktiengesellschaft  
Berlin-Bonn:  
Studie zur Hochtemperaturchlorierung als Head-End-  
Stufe der Wiederaufarbeitung von HTGR-Brennelementen;  
[November 1961]

- [45] J. Bohnenstingl, H. Gebhardt, M. Laser, G. Loßmann:  
CHLORINEX,  
Entwicklung eines Verfahrens zur Hochtemperatur-  
chlorierung von thoriumhaltigen Kernbrennelementen  
als Head-End-Stufe der Wiederaufarbeitung;  
Jül-1129-CT [Okt. 1974]
  
- [46] D. Bradley:  
AERE-CE/R-1382 (1954), AERE-CE/R-2215 (1956)
  
- [47] O.C. Dean, J.M. Chandler:  
The Preparation of Anhydrous Thoriumtetrachloride;  
Nucl. Sci. Engng. 2, [1957] 57-72
  
- [48] J.J. Katz, G.T. Seaborg:  
Chemistry of the Actinide Elements;  
John Wiley, New York [1957]
  
- [49] R.K. Steunenberg, R.C. Vogel:  
Reactor Handbook, 2nd Edition, Vol. 2;  
Interscience Publ., New York [1961]
  
- [50] T. Ishihara, K. Hirano:  
Processing of Uranium Dioxide Fuel by Chlorination  
Distillation;  
J. Atomic Energy Soc. Japan 5 [1963] 549-54
  
- [51] H. Bildstein, K. Knotik:  
Beitrag zur Aufarbeitung von oxidischen thoriumhaltigen  
Kernbrennstoffpartikeln mit Chlorgas;  
Kerntechnik 8, 110, 1960,  
Kerntechnik 13 [1971] 323-29
  
- [52] J.L. Cook, R.L. Hamner:  
The Removal of Uranium and Thorium from Graphite-fueled  
Materials by Chlorination;  
ORNL-3586 [1964]

- [53] A.V. Hariharan:  
Direct Chlorination Volatility Processing of  
Nuclear Fuels, Laboratory Studies Symp. of Re-  
processing of Nuclear Fuels;  
USAEC Conf. 690801, Nucl. Metallurgy 15 [1969]  
261 ff
- [54] K.S. Venkateswarlu:  
Possible Separation of Uranium from Thorium in  
Mixtures of  $\text{UO}_2$ - $\text{ThO}_2$  by Chlorination;  
Proc. of the Nucl. and Radiation Chemistry Symp.,  
Bombay [1966]
- [55] Chemical Technology Division  
Annual Progress Report for Period Ending May 31, 1966,  
ORNL-3845 [Sep. 1966]
- [56] K. Verwerck, W. Faist:  
Verschleißuntersuchungen in speziellen Gebieten der  
Prallzerkleinerung;  
Aufbereitungs-Technik Nr. 10 [1976] 508
- [57] H.P. Kerlin:  
Zerkleinern in Hammermühlen;  
Chem.-Ing.-Tech. 51 [1979] 316
- [58] H. Schubert:  
Aufbereitung fester mineralischer Rohstoffe,  
Bd. I, (Seite 87);  
VEB Deutscher Verlag für Grundstoffindustrie,  
Leipzig [1968]
- [59] F.A. Schwarz, J.B. Strand:  
US/FRG Cooperative HTGR Programm Joint Fuel Processing  
Demonstration JFPD Sequential Operation at General  
Atomic CO, San Diego,  
NUKEM FuE-81001,  
GA-A 16141,  
KFA-HBK-IB 2/81 [1981]



- [60] H. Schmitz, H. Tischer:  
Analytische Auswertung der Produkte aus dem JFPD-  
Preliminary-Test;  
KFA-ICT-IB-450/80 [1980]
- [61] NUKEM GmbH, Hanau:  
Kalte Prototypanlage VENUS; Planungsunterlagen  
für den Head-End-Teil der Wiederaufarbeitung von  
HTR-Brennelementen;  
Abschlußbericht (4 Bände), NUKEM-395 [Feb. 1979]
- [62] U. Tillessen:  
Rahmenprogramm zum Bau und Betrieb einer kalten  
Prototypanlage für das Head-End der Wiederaufar-  
beitung von HTR-Brennelementen;  
NUKEM-261 [Nov. 1975]
- [63] U. Tillessen:  
Konzeptstudie zur Wiederaufarbeitung von HTR-Brenn-  
elementen aus dem Gelände der Wiederaufarbeitungs-  
anlage Karlsruhe;  
NUKEM-250 [Aug. 1975]
- [64] G. Kaiser, J. Wolf, H. Ahlers, G. Meinhardt:  
Verfahrenstechnische und kerntechnische Aspekte  
bei der Auslegung, Fertigung und Montage von Kompo-  
nenten des chemischen Prozeßteils der Versuchs-  
anlage JUPITER;  
Kerntechnik 20 [1978] 550-555
- [65] N. Hoogen:  
Untersuchung zur Verbrennung von HTR-Brennelementen  
nach dem Feed-Breed-Konzept im Normal- und Über-  
druckwirbelschichtverfahren;  
Kernforschungsanlage Jülich GmbH,  
KFA-ICT-IB-423/78 [1978]

- [66] S. Huwyer, W. Seifritz:  
A Symbiotic Nuclear Energy Park as the Ultimate Primary  
Energy Source for Switzerland;  
Genesis and Rationale, EIR 291, Würenlingen [1976]
- [67] P. Schmidt:  
Alternativen zur Verminderung der C-14-Emission bei  
der Wiederaufarbeitung von HTR-Brennelementen;  
ICT [1979], Jül-1567
- [68] J. Falbe:  
Chemierohstoffe aus Kohle Kap. 5;  
Georg Thieme Verlag Stuttgart [1977]
- [69] H.-G. Aschhoff:  
Entwicklung eines Verfahrens zur Abscheidung von festem  
Kohlenstoff aus dem Kohlenmonoxid-haltigen Abgas eines  
Graphit-Vergasungs-HEAD-END's einer Wiederaufarbeitungs-  
anlage für HTR-Brennelemente;  
KFA-ICT-IB-442/79 [1979]
- [70] P. Arendt, P.P. Feistel:  
Entwicklung von Verfahren zur Umwandlung fester fossiler  
Rohstoffe mit Wärme aus Hochtemperatur-Kernreaktoren;  
Bergbauforschung Essen GmbH [1977]
- [71] H. Kronschnabel:  
Theoretische Untersuchung zur Kritikalität eines Graphit-  
Vergasungs-HEAD-END's für HTR-Brennelemente;  
KFA-ICT-IB-421/78 [1978]
- [72] H. Kronschnabel:  
Rückverwandlung von  $\text{CH}_4$  in Kohlenstoff im Graphit-Ver-  
gasungs-HEAD-END einer Wiederaufarbeitungsanlage für  
HTR-Brennelemente;  
KFA-ICT-IB-426/78 [1978]

- [73] Y. Tamai, H. Watanabe:  
Catalytic Gasification of Carbon with Steam,  
Carbondioxide and Hydrogen Carbon, 15 [1977]  
103-106
- [74] U. Schütt:  
Daten und Technologien des HTR-Brennstoffkreislaufes;  
Kap. 3.4  
HOBEG-mbH, Hanau [Jan. 1979]
- [75] W. Burkhart:  
C-14: Radiologische Umweltbelastung durch Kernkraft-  
werke;  
Eidg. Inst. f. Reaktorforschung Würenlingen, Schweiz,  
EIR-Bericht Nr. 309
- [76] H. Bonka, K. Brüssermann und G. Schwarz:  
Umweltbelastung durch Radiokohlenstoff aus Kerntechnischen Anlagen;  
Reaktortagung Berlin [April 1974]
- [77] T.W. Fowler:  
Public Health Considerations of Carbon-14 Discharges  
from the Light-Water-Cooled;  
Nuclear Power Reactor Industry,  
EPA Technicale Note ORP/TAD-76-3 [1976]
- [78] D.W. Hayes and K.W. Mac Murdo:  
Carbon-14 Production by the Nuclear Industry;  
Health Physics [1977] 215-219
- [79] G.N. Kelly, J.A. Jones, P.M. Bryant and F. Morley:  
The Predicted Radiation Exposure of the Population of  
the European Community Resulting from Discharges of  
Krypton-85, Tritium, Carbon-14, and Iodine-129 from  
the Nuclear Power Industry to the Year 2000;  
Commission of the European Communities, Doc. V/2676/75,  
Luxembourg [September 1975]

- [80] Wallace Davis, Jr.:  
Carbon-14 Production in Nuclear Reactors  
ORNL/NUREG/TM-12 [Feb. 1977]
- [81] A.G. Croff:  
An Evaluation of Options Relative to the Fixation  
and Disposal of  $^{14}\text{C}$ -Contaminated  $\text{CO}_2$  as  $\text{CaCO}_3$ ;  
ORNL/TM-5171 [April 1976]
- [82] J. Wolf:  
Entwicklung und Technikumserprobung eines Verfahrens  
zur Zerkleinerung blockförmiger HTR-Brennelemente;  
JUP-IB-1/78 [1978]
- [83] H. Barnert-Wiemer:  
Abgasbehandlung der chlorierenden Wiederaufarbeitung  
graphithaltiger Kernbrenn- und-brutelemente aus Hoch-  
temperaturreaktoren;  
Jül-826-CT [Jan. 1972]
- [84] H. Tischer:  
Wirbelschichtverbrennung in einer HTR-Wiederaufar-  
beitungsanlage;  
Jahresbericht der KFA-Jülich (Institut für Chem. Techno-  
logie), Jahrebericht 1978/79 [1979]
- [85] N. Hoogen:  
Aufbau und Inbetriebnahme einer Versuchsanlage zur  
Verbrennung des Brennelementgraphits von Hochtemperatur-  
brennelementen mit mechanischer Dosierung und pneuma-  
tischer Staubrückführung;  
KFA-ICT-IB-417/77 [1977]
- [86] H. Kronschnabel:  
Kugelfräse,  
Erfindungsmeldung vom 13.8.1980, PT O.637

- [87] H. Tischer:  
Betriebsanweisung zum Versuchsstand mit dem WSR 200;  
KFA-ICT-IB-440/79 [1979]
  
- [88] P. Proplesch:  
Ergebnisse von Funktionsprüfungen an der Verbrennungszelle JUPITER;  
KFA-JUP-IB-4/78 [Sep. 1978]
  
- [89] J.B. Strand, J.W. Baer, E.J. Cook:  
UNIFRAME Interim Design Report;  
General Atomic Project 3261,  
GAA-A 14645, UC-77 [Dez. 1977]
  
- [90] B.J. Baxter, E. Cook, C.M. Miller, J.B. Strand:  
Conceptual Design for a Prototype Fuel Element  
Size Reduction System Designated UNIFRAME;  
General Atomic Project 3225,  
GA-A 13275, UC-77 [Sept. 1975]
  
- [91] C.A. Heath:  
Reprocessing Development for HTGR-Fuels;  
GA-A 13279 [Feb. 1975]
  
- [92] H.O. Witte:  
ORNL-TM-1506 [April 1967]
  
- [93] E.L. Nicholson:  
USAAC-Symposium on Thorium Fuel Cycle, May 1968;  
CONF-660524 [1968]
  
- [94] J.R. Flanary:  
ORNL 4120
  
- [95] Chemical Technology Division,  
Annual Report for Period Ending May 1967;  
ORNL-1967

- [96] G.D.C. Short, G. Orseignio, E. Römberg:  
Thorium Fuel Cycle;  
USAEC-Symposium, May 1968, CONF-660524 [1968]
- [97] H. Beaujean, P. Filss, U. Grahmann, M. Laser,  
E. Merz, U. Tillessen:  
Reinigung der Verbrennungsabgase bei der Wiederauf-  
arbeitung von HTR-Brennelementen;  
Jül-925-CT [Feb. 1973]
- [98] H. Barnert-Wiemer, E. Merz:  
Abgasbehandlung bei der Wiederaufarbeitung von Brennele-  
menten des Hochtemperaturreaktors (HTR);  
Vortrag auf dem Jahrestreffen 1980 der Verfahrens-  
ingenieure, Straßburg 1.-3.10.1980, KFA-ICT-IB-1980  
[1980]
- [99] R. Böhnert:  
Die Behandlung flüchtiger Radionuklide in Wiederaufar-  
beitungsanlagen für Kernbrennstoffe;  
Jül-1089-CT [Juli 1974]
- [100] U. Griemert:  
Qualitative und quantitative Ermittlung kondensierbarer  
flüchtiger Nuklide aus den Hochtemperaturstufen der  
Wiederaufarbeitung abgebrannter HTR-Kugelnbrennstoffe;  
KFA-ICT-414, IB-77 [1977]
- [101] H. Werner:  
Kritikalitätsrechnung für den Wirbelschichtreaktor  
JUPITER;  
Diplomarbeit am Lehrstuhl für Reaktortechnik, Fakultät  
Maschinenwesen, der RWTH-Aachen (Sommersemester 1972)
- [102] M. Münster, R. Böhnert, H. Bonka:  
Theoretische Untersuchungen zur Kritikalität von Wirbel-  
schichtöfen für HTR-Brennelemente;  
Jül-1350 [Okt. 1976]

- [103] H. Barnert-Wiemer, R. Böhnert:  
Kosten des Verbrennungs-HEAD-END's einschließlich  
der Kr-Abtrennung bei der Wiederaufarbeitung von  
HTR-Brennelementen;  
Jül-1320 [Juli 1976]
- [104] L. Menchero, E.G. Vermeulen, E. Dillens:  
Some Possibilities of Aqueous Processing of Graphite-  
Carbide Fuel Elements;  
Contribution Symp. Fuel Cycles of High Temperature  
Gas-Cooled Reactors, Brussels [1965]
- [105] K. Hartmann:  
Untersuchungen zur Zerstörung SiC-umhüllter Kernbrenn-  
stoffpartikeln für eine anschließende Wiederaufarbei-  
tung, Dipl. Arbeit 1975, Institut für Chem. Technologie  
KFA-Jülich [1975]
- [106] W.B. Palmer:  
Breaking Silicon Carbide Coated Unirradiated Ft. St.  
Vrain Fuel Particles by Jet Grinding;  
Allied Chemical Corporation Idaho Falls, Idaho, USA,  
ICP-1043 [April 1974]
- [107] Kernforschungsanlage Jülich GmbH:  
HBK-Projekt (Hochtemperatur-Brennstoff-Kreislauf);  
Rahmenplan, Phase 1: 1977-1980 [Nov. 1977]
- [108] G. Kaiser, E. Merz:  
JUPITER, Wiederaufarbeitung verbrauchter HTR-Brenn-  
elemente;  
Sonderdruck der KFA-Jülich [1975]
- [109] C. Walter, W. Simon, R. Böhnert:  
Kalte Prototyp-Anlage VENUS, Planungsunterlagen für  
den HEAD-END-Verbrennungsprozeß der Wiederaufarbeitung-  
von HTR-Brennelementen, Zusammenfassung;  
NUKEM, Hanau, Institut für Chemische Technologie der  
KFA-Jülich GmbH [Dez. 1977]

- [110] C. Walter, W. Simon, R. Böhnert:  
Kalte Prototyp-Anlage VENUS, Planungsunterlagen für  
den HEAD-END-Verbrennungsprozeß der Wiederaufar-  
beitung von HTR-Brennelementen, Zusammenfassung;  
NUKEM, Hanau, Institut für Chemische Technologie der  
KFA-Jülich GmbH [Dez. 1977]
- [111] R. Böhnert, C. Walter:  
Rahmenprogramm zum Bau und Betrieb einer kalten  
Prototypanlage für das Head-End der Wiederaufarbeitung  
von HTR-Brennelementen, Tätigkeitsbericht für den  
Zeitraum vom 1.11.1975 bis 30.6.1975;  
KFA-ICT-IB 406/75, NUKEM-Nr. 302 [1976]
- [112] R. Böhnert, C. Walter:  
Rahmenprogramm zum Bau und Betrieb einer kalten  
Prototypanlage für das Head-End der Wiederaufarbeitung  
von HTR-Brennelementen, Tätigkeitsbericht für den  
Zeitraum vom 1.7.1976 bis 31.12.1976;  
KFA-ICT-IB-411/77, NUKEM-Nr. 328 [1977]
- [113] R. Böhnert, C. Walter:  
Rahmenprogramm zum Bau und Betrieb einer kalten  
Prototypanlage für das Head-End der Wiederaufarbeitung  
von HTR-Brennelementen, Tätigkeitsbericht für den  
Zeitraum vom 1.1.1977 bis 30.6.1977;  
KFA-ICT-IB 416/77, NUKEM-Nr. 351 [1977]
- [114] B.J. Baxter, A. Gasparovic, A.H. Bond:  
Primary Jaw Crusher Development;  
GA-A 12864 (UC-77) [Feb. 1974]
- [115] J.W. Snider, D.C. Watkin:  
An Evaluation of HTGR Primary Burning;  
ORNL-TM-450 (UC-77), (Contract No. W-7405-eng-26),  
(date published ?)



- [116] H. Tischer, N. Hoogen:  
Possibilities for Decreasing the Wastes Arising  
from the HEAD-END of a HTR-Fuel Reprocessing  
Plant;  
American Ceramic Soc. Annual Meeting Chicago,  
April 28-30 [1980]
- [117] N. Hoogen, H. Tischer:  
Möglichkeiten zur Verringerung der Abfallmengen  
aus dem HEAD-END einer Wiederaufarbeitungsanlage  
für HTR-Brennelemente;  
KFA-ICT-IB-451/80 [Mai 1980]
- [118] F.A. Schwarz, H.E. Tischer, R.N. Drake, W.S. Rickmann,  
N.D. Holder, J.B. Strand:  
Großversuch zur Wiederaufarbeitung von kugelförmigen  
HTR-Brennelementen;  
Jahrestagung Kerntechnik, Düsseldorf, 24.-26. März  
1981, 311-314
- [119] N.D. Holder, J.B. Strand, F.A. Schwarz, H.E. Tischer:  
Processing of FRG Mixed Oxide Fuel Elements at  
General Atomic under the US/FRG Cooperative Agreement  
for Spent Fuel Elements;  
American Nuclear Society/European Nuclear Society  
Conference, No. 16-21, 1980, Washington, D.C.,  
Gedruckt:  
GA-A 16111 [Nov. 1980]
- [120] G. Kaiser:  
Halbtechnische Versuchsanlage JUPITER zur Wieder-  
aufarbeitung bestrahlter HTR-Brennelemente;  
KFA-ICT-IB-5/78 [Sept. 1978]
- [121] G. Kaiser:  
Special Items relating to the Design Fabrication  
and Assembly of Components of the Chemical Processing  
Part of JUPITER;  
KFA-JUP-IB-3/78 [Okt. 1978]

- [122] G. Schröder:  
Experimente zur Auflösung von bestrahlten HTR-  
Brennstoffen mit prototypischen Komponenten der  
Versuchsanlage JUPITER;  
KFA-JUP-IB-6/79 [März 1979]
- [123] R. Kankura:  
Untersuchungen zum Betriebs- und Störfallverhalten  
der JUPITER-Mischabsetzer;  
KFA-JUP-IB-7/79 [Okt. 1979]
- [124] R. Böhnert, K. Hartmann:  
Vorrichtung zum Aufbrechen der Hüllschichten von  
beschichteten Brenn- und/oder Brutstoffpartikeln  
für Kernreaktoren;  
Patent-Nr. P 2617067.2-33 [1976]
- [125] F. Schwarz:  
Besuchsbericht mit verfahrenstechnischer Be-  
schreibung der HTGR Reprocessing Cold Pilot  
Plant der General Atomic Comp., San Diego;  
NUKEM-499 [Nov. 1979]
- [126] Umbrella Agreement for US/FRG Cooperation  
on Gas Cooled Reactor Development
- [127] K. Hartmann, H. Schmitz, H. Tischer:  
Aufbrechen der SiC-Beschichtung bestrahlter  
UO<sub>2</sub>-TRISO-Partikeln durch Prallbeanspruchung  
in einer Strahlmühle;  
Jül-Spez-80 [Juni 1980]
- [128] N. Hoogen. H. Tischer:  
HTR-Aufarbeitung; Zur Verringerung der Abfallmengen  
aus dem HEAD-END;  
Atomwirtschaft-Atomtechnik 12 [1980] 610-612

- [129] H. Tischer, K. Hartmann, N. Hoogen, P. Schmidt:  
Einsatzmöglichkeiten des Wirbelschichtverbrennungs-  
verfahrens im Head-End einer Großanlage zur Wieder-  
aufarbeitung von HTR-Brennelementen;  
Vortrag: Fachseminar zur Wiederaufarbeitung und Ent-  
sorgung im Thorium-Brennstoffkreislauf, 26.-27.10.1978  
in der KFA-Jülich, Jül-Conf-30 [Feb. 1979] 13-27
- [130] Studie über verschiedene Anströmböden zur Wirbel-  
schichterzeugung;  
Nukem GmbH, Hanau 11  
[1976] SW/bal
- [131] R. Böhnert, H. Bonka, M. Münster:  
Theoretische Untersuchungen zur Kritikalität im Head-  
End der Wiederaufarbeitung von HTR-Brennelementen;  
Reaktortagung 1976 des DATF, 30.3.-2.4.1976, Düssel-  
dorf [1976]
- [132] David de Lesdernier:  
Pneumatic Classification of Fort St. Vrain Fuel  
Particles;  
GA-A 13135 (UC-77) [June 1975]
- [133] P.A. Haas:  
HTGR Fuel Reprocessing:  
A Whole-Block Burner with Recycle of Cooled Gas for  
Temperature Control;  
ORNL-TM-4519 [Aug. 1974]
- [134] C.L. Fitzgerald, V.C.A. Vaughen, K.J. Notz, R.S. Lowrie:  
Head-End Reprocessing Studies With Irradiated HTGR-  
Type Fuels: III. Studies With RTE-7: TRISO UC<sub>2</sub>-TRISO  
ThC<sub>2</sub>;  
ORNL-5090 [Nov. 1975]

- [135] R.T. Stula, D.T. Young, H.H. Yip:  
Interim Development Report for Primary Burning;  
GA-A 13546 (UC-77) [1976]
  
- [136] D.T. Young:  
Process Development Report:  
O,40 m Primary Burner System;  
GA-A 14816 (UC-77) [April 1978]
  
- [137] Program Plan for HTGR Fuel Recycle Development,  
jointly prepared by US Staff: HTGR Fuel Recycle  
Development Program and FRG Staff: HBK-Projekt,  
Hochtemperaturreaktor-Brennstoffkreislauf, ORNL/NFW-19/20,  
HBK-TN-19/79
  
- [138] Planing Documents for the Joint Fuel Processing  
Demonstration (JFPD), jointly prepared by US-Staff:  
HTGR Fuel Recycle Development Program and FRG-Staff:  
HBK-Projekt, Hochtemperaturreaktor-Brennstoffkreislauf,  
HBK-TN-23/79
  
- [139] J.N. Nagy, H.G. Dorsett, A.R. Cooper:  
Explosibility of Carbonaceous Dusts;  
Bureau of Mines, report of investigations 6597 [1965]
  
- [140] H.F. Coward, G.W. Jones:  
Limits of Flammability of Gases and Vapors;  
Bulletin 503 (S. 32-35), AD701-575
  
- [141] ORNL-TM-4520  
((CO<sub>2</sub>-CO-O<sub>2</sub>)-Explosionsverhalten)
  
- [142] P. Naefe, E. Zimmer:  
Auswirkungen des Brennstoffkonzepts auf den Brennstoff-  
kreislauf des Hochtemperaturreaktors;  
Jül-1286 [1976]

- [143] M.K. Valentine:  
Development of A Gas Classification Method for  
Separating F.S.V.-TRISO-TRISO-Fuel Particles;  
Idaho, USA, I.C.P.1051 [1974]
- [144] J. Wehmeyer:  
Projekt VENUS, Überlegungen zur Feed-Breed-Trennung;  
Laborbericht der Fa. Nukem, Hanau (unpublished data),  
[1976]
- [145] F. Kaiser:  
Der Zick-Zack-Sichter - ein Windsichter nach neuem  
Prinzip;  
Chem.-Ing.-Technik, 35 [1963]
- [146] V.C.A Vaughen:  
On Separation of Silicon-carbide Coated Fertile  
and Fissile Particles by Gas Classification;  
Oak Ridge, USA, ORNL/TM-5091, UC-77 [1976]
- [147] O. Lauer:  
Auswahl des richtigen Windsichters nach Produktions-  
anforderungen;  
Maschinenmarkt Würzburg, 82 [1976] 47
- [148] J. Wessel:  
Probleme bei der Trennung feinkörniger Güter durch  
Sieben und Sichten;  
Verfahrenstechnik 1, Nr. 3, München [1967]
- [149] Alpine AG:  
Betriebsvorschrift des Multi-Plex-Labor-Zick-Zack-  
Sichters MZM 1-40 [1975]
- [150] T. Meinander:  
Zur Theorie der Starkfeld-Elektroscheidung;  
Aufbereitungstechnik Nr. 3 [1977]

- [151] S.G. Frantz:  
Magnetic Separation Method and Means;  
U.S.-Patent Nr. 2.056426 [1932]
- [152] P. de Lesdernier:  
Crossover and Particle Breakage Analysis of the  
Air Classification Step in the Scarp-Rod-Program;  
GAC (unpublished data) [1975]
- [153] R. Böhnert, G. Kaiser:  
Verbrennung des Graphits von HTR-Brennelementen in  
einer inertstofffreien Wirbelschicht,  
Vorentwurf einer kalten Prototypanlage;  
ICT-IB [Juni 1974]
- [154] J.B. Strand:  
Separation Studies on HTGR Fissile and Fertile Fuel  
Particles-supplied by the Federal Republic of  
Germany;  
GA-A 15648 (UC-86) [Jan. 1980]
- [155] W.S. Rickmann:  
Process Development Report:  
0,20 m Primary Burner System;  
GA-A 15088 (UC-77) [Sept. 1978]
- [156] R.T. Stula, D.T. Young, J.S. Rode:  
0,20 m (8-in.) Primary Burner Development Report;  
GA-A 14643 (UC-77)
- [157] W.S. Rickmann:  
Interim Development Report for Secondary Burning;  
GA-A 13540 (UC-77) [Dec. 1975]
- [158] E.J. Cook, P.C. Richards:  
Selection and Testing of On-Line Samplers for HEAD-  
END Reprocessing;  
GA-A 14634 (UC-77) [Oct. 1977]

- [159] Project Staff der GAC:  
The General Atomic HTGR Fuel Reprocessing Pilot Plant:  
Results of Initial Sequential Equipment Operation;  
GA-A 15081 (UC-77) [Sept. 1978]
- [160] E.J. Cook, P.C. Richards:  
Initial Performance Evaluation of Major Components  
in the HEAD-END Reprocessing Solids Handling System;  
GA-A 14508 (UC-77) [Sept. 1977]
- [161] J.M. McNair:  
Design Evaluation:  
Pneumatic Transport and Classification;  
GA-A 14860 (UC-77) [Oct. 1979]
- [162] FRYMA:  
Bedienungsanleitung zu FRYMA Steinmühle;  
FRYMA-Rheinfelden, Zerkleinerungstechnik
- [163] P.C. Richards, E.J. Cook:  
Pneumatic Conveying in HTGR Nuclear Fuel Reprocessing;  
GA-A 14705 [April 1978]
- [164] W.S. Rickmann:  
Process Development Report:  
0,20 m Secondary Burner System;  
GA-A 14542 (UC-77) [Sept. 1977]
- [165] D.E. Fields, J.M. McNair, W.S. Rickmann:  
Control and Instrumentation of a Fluidized Bed Burner;  
General Atomic Project 3261, GA-A 15404 [May 1979]
- [166] E. Merz:  
Wiederaufarbeitung thoriumhaltiger Kernbrennstoffe;  
Jahrestätigkeitsbericht für den Zeitraum 1.7.75-  
30.6.76, KFA-Jülich, Institut für Chemische Techno-  
logie [1976]

- [167]      Daten und Technologien des Hochtemperaturreaktor-  
         Brennstoffkreislaufes, Teilberiech: Versorgung  
         FuE 80039, HOBEG [1980]
- [168]      Everline C. J.  
         Preliminary Criticality Safety Evaluation HRRF  
         Fuel Storage and Dry Head End Systems  
         GA-A 15 252 GAC, San Diego [Oct. 1979]
- [169]      Manfred Münster  
         Kritikalitätsprobleme im HEAD-END der Wiederauf-  
         arbeitung von Brennelementen gasgekühlter Hochtempe-  
         raturreaktoren,  
         Dissertation RWTH-Aachen, Fak. f. Maschinenwesen  
         [Dez. 1980]



8. ABKÜRZUNGEN

ARTHUR	<u>A</u> rbeitsgemeinschaft <u>R</u> eprocessing <u>T</u> horium und <u>U</u> ran d. i.: Bau und Betrieb einer Prototypanlage zur Wiederaufarbeitung von HTR-Brennelementen
AVR	Arbeitsgemeinschaft Versuchs-Reaktor (Jül HTR)
BE	Brennelement
BISO	<u>B</u> inary <u>I</u> sotropic, Zweifach-Beschichtung der Brennstoffpartikel (2 PyC-Schichten unter- schiedlicher Dichte)
BREED	Brutstoff ( $\text{ThO}_2$ bzw. $\text{ThC}_2$ )
C	Graphit, Kohlenstoff
CP	coated particle, beschichtetes Teilchen
DI	Desintegration, Zerstörung der Brennelement- struktur
FEED	Spaltstoff ( $\text{UO}_2$ bzw. $\text{UC}_2$ )
GAC	General Atomic Companie, San Diego, USA
HBK	Hochtemperatur-Brennstoff-Kreislauf-Projekt
HEU	high enriched uranium, Brennelemente mit hoch angereichertem Uran
HRB	Hochtemperatur-Reaktorbau GmbH
HTR	Hochtemperaturreaktor
JFPD	Joint-Fuel-Processing-Demonstration
JUPITER	<u>J</u> uelicher <u>P</u> ilotanlage für <u>T</u> horium- <u>E</u> lement <u>R</u> eprocessing d. i.: Bau und Betrieb einer Pilotanlage zur Wiederaufarbeitung von HTR-Brennelementen
JPHF	Joint Prototype HEAD-END Facility
LEU	Low enriched Uranium
LEU-BE	HTR-Brennelemente Einpartikelbrennstoffsystem mit niedrig angereichertem Brennstoff ( $\text{UO}_2$ )

LWR	Leichtwasserreaktor
MWe	Megawatt-elektrisch
PUREX	<u>Pu-U-Recovery</u> by <u>EXtraction</u> (Trennung des Brennstoffes (U,Pu) von Reststoffen und Trennung von Uran und Plutonium voneinander durch Extraktion)
PyC	Pyrokohlenstoff
SiC	Siliciumcarbid
SM	Schwermetall (Uran, Thorium, Plutonium = Brennstoff)
THOREX	<u>THorium-Recovery</u> by <u>EXtraction</u> (Trennung des Brennstoffes Th u. U von Reststoffen und Trennung U von Th)
VENUS	<u>VErbrennung</u> von <u>Natururanhaltigen</u> HTR-Brenn- elementen <u>Und Separation</u> der Partikel d. i.: Bau und Betrieb einer "kalten" Proto- typanlage für das HEAD-END von HTR-Brenn- elementen (die Wirbelschichtverbrennung des Graphits zerkleinerter unbestrahlter Brenn- elemente)
WA	Wiederaufarbeitung
WAA	Wiederaufarbeitungsanlage
WS	Wirbelschicht
WSR	Wirbelschichtreaktor (mit Innendurchmesser [mm])